Nº D'ORDRE au C.N.R.S.
AO. 5182

THÈSE

PRÉSENTÉE

A LA FACULTÉ DES SCIENCES DE L'UNIVERSITÉ DE ROUEN

pour obtenir

LE GRADE DE DOCTEUR ÈS SCIENCES PHYSIQUES

par

Jean LE BAS

Sujet - PROPRIETES DES COUCHES MINCES DE NICKEL ETUDIEES SOUS ULTRA VIDE. ELECTROGENESE, RESISTIVITE, EFFET HALL.

présentée et soutenue le ***Janvier 1971.***

MM.	A. COLOMBANI	Doyen de la Faculté des Sciences de ROUEN	Président
	P. ROUARD	Membre de l'Institut Doyen honoraire de la Faculté des Sciences de MARSEILLE	Examinateurs
	R. GRAF	Professeur à la Faculté des Sciences de ROUEN	
Mme	M. ROUSSEAU	Professeur à la Faculté des Sciences de ROUEN	
M.	P. HAYMANN	Professeur à la Faculté des Sciences de ROUEN	

Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41544705_0013

Nº D'ORDRE au C.N.R.S.
AO. 5182

THÈSE

PRÉSENTÉE

A LA FACULTÉ DES SCIENCES DE L'UNIVERSITÉ DE ROUEN

pour obtenir

LE GRADE DE DOCTEUR ÈS SCIENCES PHYSIQUES

par

Jean LE BAS

Sujet - PROPRIETES DES COUCHES MINCES DE NICKEL ETUDIEES SOUS ULTRA VIDE. ELECTROGENESE, RESISTIVITE, EFFET HALL.

présentée et soutenue le ***Janvier 1971.***

MM.	A. COLOMBANI	Doyen de la Faculté des Sciences de ROUEN	Président
	P. ROUARD	Membre de l'Institut Doyen honoraire de la Faculté des Sciences de MARSEILLE	Examinateurs
	R. GRAF	Professeur à la Faculté des Sciences de ROUEN	
Mme	M. ROUSSEAU	Professeur à la Faculté des Sciences de ROUEN	
M.	P. HAYMANN	Professeur à la Faculté des Sciences de ROUEN	

UNIV.
LEIDEN
BIBL.

ACADEMIE DE ROUEN
FACULTE DES SCIENCES

Année scolaire 1970-1971

PERSONNEL ENSEIGNANT DE LA FACULTE DES SCIENCES

Le Doyen ..... A. COLOMBANI

Mlle	COUILLAUD Edith	Professeur Honoraire
MM.	BACHELET Maurice	Professeur (Chimie)
	BOULLARD Bernard	Professeur (Biologie Végétale)
	BOURION Georges	Professeur (Mathématiques)
	COLOMBANI Antoine	Professeur (Physique)
	GRAF René	Professeur (Physique)
	LEFEBVRE Henri	Professeur (Chimie)
	REY Pierre	Professeur (Biologie Animale)
	ROLLIN Paul	Professeur (Biologie Végétale)
	VALENTIN Pierre	Professeur (Physique)
MM.	BACKES Michel	Professeur à titre personnel (Chimie)
	BOUIX Maurice	Professeur à titre personnel (Mathématiques)
Mme	ROUSSEAU Madeleine	Professeur à titre personnel (Physique)
Mme	WINOGRADZKI Judith	Professeur à titre personnel (Physique)
MM.	CHALOPIN Henri	Professeur sans chaire (Biologie Animale)
	DUHAMEL Pierre	Professeur sans chaire (Chimie)
	GRIBENSKI André	Professeur sans chaire (Biologie Animale)
	HAYMANN Pierre	Professeur sans chaire (Physique)
	HUET Pierre	Professeur sans chaire (Physique)
	SELEGNY Eric	Professeur sans chaire (Chimie)
	THELLIER Michel	Professeur sans chaire (Biologie Végétale)
MM.	BARDOS Claude	Maître de Conférences (Mathématiques)
	BOUAZIZ Roger	Maître de Conférences (Chimie)
	CHARPENTIER Jean	Maître de Conférences (Biologie Animale) Psycho-physiologie
	COHEN Paul	Maître de Conférences (Biochimie)
	FLEURY M. Bernard	Maître de Conférences (Chimie)
	GALLOT Jean	Maître de Conférences (Physique)
Mlle	GERARD Françoise	Maître de Conférences (Mathématiques) Centre du Havre
MM.	GOUAULT Jean	Maître de Conférences (Physique)
	HANSEL Georges	Maître de Conférences (Mathématiques)
	HOMMERIL Pierre	Maître de Conférences (Géologie)
	PETIT Jean Luc	Maître de Conférences (Mathématiques)
	ROUGEE Paul	Maître de Conférences (Mathématiques)
Mme	SURIN Aline	Maître de Conférences (Mathématiques)
Mme	TINTURIER Emannuelle	Maître de Conférences (Biologie Animale)
Mr	VAUTIER Claude	Maître de Conférences (Physique) Centre du Havre
MM.	RAOULT Jean-Pierre	Chargé d'enseignement (Mathématiques)
	KOSSANYI Jean	Chargé d'enseignement (Chimie)
Mr	GIRAULT A.	Attaché Principal d'Administration

Ce travail a été effectué au Laboratoire de Physique des Couches Minces de la Faculté des Sciences de Rouen, sous la direction de Monsieur le Doyen COLOMBANI. Qu'il veuille bien trouver ici l'expression de mon respect et de ma gratitude pour tous les conseils qu'il m'a prodigués.

A Monsieur le Doyen ROUARD, Membre de l'Institut, j'exprime toute ma reconnaissance pour sa bienveillance à mon égard et pour l'honneur qu'il me fait en acceptant de participer au Jury.

A Monsieur le Professeur GRAF, Madame le Professeur ROUSSEAU et Monsieur le Professeur HAYMANN, j'exprime également ma reconnaissance pour l'intérêt qu'ils m'ont toujours témoigné et pour avoir accepté d'examiner cette thèse.

Je remercie vivement mes Collègues LHERMITTE et MENAND ainsi que tous ceux, Chercheurs et Techniciens, qui, à un moment ou à un autre, m'ont apporté leur concours. En particulier, Madame VUAGNAT pour les études de microscopie électronique, Mademoiselle TAVERNIER qui a dactylographié ce mémoire et Monsieur HERNANDEZ qui l'a imprimé.

Sommaire

INTRODUCTION..... 1

CHAPITRE I - DISPOSITIF EXPERIMENTAL..... 3

I - Le groupe d'évaporation..... 3
II - Obtention de l'ultra-vide..... 10
III - La préparation des échantillons..... 13
III.1 - Le support de condensation..... 13
III.2 - Les électrodes de mesure..... 14
III.3 - Le porte-échantillons..... 15
III.4 - La sublimation du nickel..... 18
IV - Mesure des épaisseurs..... 21
V - Obtention et mesure des températures..... 23
V.1 - Le dispositif de chauffage des échantillons..... 23
V.2 - Mesure des températures..... 25
VI - Mesure de l'effet Hall..... 29
VI.1 - Production d'un champ magnétique sous vide..... 29
VI.2 - Mesure de la tension de Hall..... 30
VII - Mesure des résistances..... 31

CHAPITRE II - STRUCTURE ET PROPRIETES ELECTRIQUES DES FILMS..... 32

I - Pureté des dépôts obtenus..... 32
II - La résistivité des films non recuits..... 36
III - Structure cristalline des dépôts..... 41
IV - Influence du recuit sur les propriétés électriques..... 48
V - Propriétés des films recuits..... 51

CHAPITRE III - ACTION D'UN CHAMP ELECTRIQUE SUR LA FORMATION DES FILMS TRES MINCES..... 52

I - Dispositif expérimental..... 52
II - Résultats expérimentaux..... 58
III - Relation entre la résistance électrique des films et leur structure..... 62
III.1 - Couches granulaires..... 62
III.2 - Films lacunaires..... 64
III.3 - Lames continues..... 67
III.4 - Conclusion..... 68
IV - La formation des films..... 68
V - Influence d'un champ électrique sur la formation des films. 74
V.1 - Mécanismes d'action du champ électrique..... 74
V.2 - Calcul de la force qui s'exerce entre deux sphères conductrices isolées, placées dans un champ uniforme..... 76
V.3 - La diffusion superficielle à l'échelle granulaire et la résistance électrique..... 80
V.4 - Forme d'équilibre des îlots..... 82
V.5 - Conclusion..... 90
VI - Influence d'un champ électrique sur l'évolution spontanée des films..... 90
VI.1 - Evolution spontanée en l'absence de champ électrique..... 91
VI.2 - Evolution spontanée en présence d'un champ électrique..... 93

CHAPITRE IV - PHENOMENOLOGIE ET MESURE DE L'EFFET HALL..... 95

I - Phénoménologie de l'effet Hall dans les métaux..... 95
II - Phénoménologie de l'effet Hall dans les ferromagnétiques... 97
II.1 - Effet champ - Effet aimantation..... 97
II.2 - Résistivité de Hall d'un échantillon monodomaine... 101
II.3 - Résistivité de Hall d'un échantillon multidomaines. 104
II.4 - Hystérésis de la résistivité de Hall..... 108
III - Mesure de l'effet Hall..... 110
III.1 - Les effets thermogalvanomagnétiques associés..... 110
III.2 - Dispositif expérimental..... 115
III.3 - Mode opératoire..... 117

CHAPITRE V - EFFET HALL : RESULTATS EXPERIMENTAUX..... 119

I - Allure générale du phénomène..... 119
I.1 - Lames non recuites..... 119
I.2 - Influence du recuit..... 122
I.3 - Influence de l'épaisseur du film..... 126
I.4 - Cas des lames très minces..... 126
I.5 - Influence de la température..... 129
II - Etudes qualitatives des courbes $V_2(B)$ dans les champs faibles..... 131
II.1 - Résultats expérimentaux..... 131
II.2 - Interprétation..... 133
III - Effet Hall des lames d'épaisseur supérieure à 120 Å..... 136
III.1 - Détermination de V_H..... 136
III.2 - Effet Hall à la température ambiante des lames recuites à 425°C..... 140
III.3 - Influence du recuit..... 147
III.4 - Effet Hall en fonction de la température..... 147
IV - Analyse des résultats du paragraphe précédent..... 154
IV.1 - L'effet Hall aux températures inférieures à 250°C.. 154
IV.2 - L'effet Hall au voisinage du point de Curie..... 157
V - Effet Hall des couches très minces..... 159

CHAPITRE VI - STRUCTURES MAGNETIQUES ET ELECTRONIQUES DES FILMS..... 165

I - Structure magnétique des films très minces..... 165
II - Structure magnétique des films d'épaisseur supérieure à 120 Å..... 173
II.1 - L'anisotropie perpendiculaire des films de nickel.. 174
II.2 - Caractéristiques magnétiques statiques des films... 178
II.3 - Caractéristiques magnétiques dynamiques des films.. 183
II.4 - Le phénomène de trainage..... 185
II.5 - Conclusion..... 193
III - Effet Hall "aimantation"..... 194
III.1 - Evaluation de l'aimantation spontanée et calcul de R_1..... 194
III.2 - Les théories de l'effet Hall aimantation..... 198
IV - Le libre parcours moyen et la surface de Fermi du nickel... 202
IV.1 - Détermination du libre parcours moyen..... 202
IV.2 - Discussion..... 204
IV.3 - L'effet Hall ordinaire du nickel..... 207

CONCLUSION..... 209

BIBLIOGRAPHIE..... 212

ANNEXE A

ANNEXE B

Introduction

L'un des problèmes fondamentaux du ferromagnétisme que l'on peut, à priori, espérer résoudre en étudiant les propriétés des couches minces concerne l'existence du ferromagnétisme dans un réseau à deux dimensions. Bloch |1| puis Weiss |9| ont en effet conclu qu'un tel réseau ne pouvait présenter les caractères du ferromagnétisme. Cette hypothèse ayant été mise en doute |2| |4| |7|, l'étude expérimentale des films très minces devrait permettre de résoudre la question et d'observer éventuellement la transition de l'état ferromagnétique vers l'état paramagnétique du réseau à deux dimensions. En fait, cela serait possible si on savait fabriquer des films très minces présentant une structure cristalline identique à celle du métal massif or, il n'en est rien. Les films très minces sont constitués de grains isolés les uns des autres aussi, doivent-ils être considérés comme une collectivité de particules et non comme une "tranche" du matériau massif. Cependant, jusqu'en 1959, on pouvait considérer comme acquis que l'aimantation, par exemple, diminuait avec l'épaisseur lorsque celle-ci devenait inférieure à 150 Å environ, c'est-à dire qu'elle commençait à diminuer dans un domaine d'épaisseur où les lames ont encore une structure à peu près continue. Il y avait alors une bonne concordance entre les résultats expérimentaux |10| relatifs à des films préparés sous bon vide (10^{-6} torr) et les théories existantes |3| |5|.

Ce sont les travaux expérimentaux de Neugebauer |6| et théoriques de Valenta |8| qui ont tout remis en question ; Neugebauer ayant constaté que des films de Nickel de 27 Å d'épaisseur, déposés sous ultra-vide (10^{-9} torr) possédaient encore l'aimantation du métal massif, ce qui est en accord avec la théorie de Valenta.

Depuis, de nombreux travaux ont conduit à des résultats assez divergents |11|.

Dans ces conditions, il semblait intéressant de reprendre, sous ultra-vide, l'étude des propriétés électriques et galvanomagnétiques des films de Nickel.

Lorsque j'ai entrepris cette étude, il n'existait pas encore sur le marché, d'appareil d'évaporation sous ultra-vide satisfaisant. Aussi, ai-je commencé par construire avec les moyens du Laboratoire, un groupe d'évaporation qui m'a permis de déposer des films de nickel sans que la pression pendant l'évaporation dépasse 6.10^{-10} torr. Je décrirai sommairement ce groupe dans le chapitre I en même temps que l'appareillage de mesure de la résistivité et de l'effet Hall.

Le chapitre II est consacré à la structure et aux propriétés électriques des films obtenus.

Plusieurs travaux expérimentaux |12| ayant montré qu'un champ électrique appliqué parallèlement au support pendant le dépôt d'un film métallique améliorait sa structure en ce sens que la coalescence des grains, qui amorce la formation d'un film continu, se produisait pour une épaisseur plus faible en présence du champ que sans champ, j'ai tenté d'utiliser cette méthode pour obtenir des films très minces, plus proches de la "tranche" de métal massif que ceux obtenus habituellement. J'ai obtenu des résultats exactement opposés à ceux escomptés. L'analyse et l'interprétation de ces résultats fait l'objet du chapitre III.

Les trois derniers chapitres sont consacrés à la présentation, l'analyse et l'interprétation des résultats relatifs à l'effet Hall.

Chapitre I

Dispositif expérimental

I - LE GROUPE D'EVAPORATION

J'ai réalisé successivement deux groupes d'évaporation sous ultra-vide. Le premier comportait une pompe primaire à palettes (marque Edwards type 150 A) et une pompe secondaire à diffusion d'huile (Edwards F 200) munie d'un baffle à eau et d'un piège à azote liquide. L'enceinte, en acier inoxydable, avait un volume de 15 litres environ. Un petit sublimateur à titane placé à l'intérieur de l'enceinte me permettait d'obtenir, en 24 heures, après étuvage à 350°C de l'enceinte et du piège à azote liquide, une pression de 5.10^{-10} Torr, mesurée avec une jauge Bayard et Alpert non insérée. Mais la vitesse de pompage en ultra-vide était très faible et l'évaporation du nickel, en dépit des précautions prises, ne pouvait se faire qu'au voisinage de 5.10^{-9} Torr. D'autre part, bien que je n'aie pu le vérifier en analysant l'atmosphère résiduelle, il est probable qu'un tel dispositif ne constitue pas ce que l'on peut appeler une installation de vide "propre" |1|. C'est pourquoi, j'ai réalisé un second groupe d'évaporation utilisant une pompe ionique (marque Ultek, type 20-185), le pompage primaire étant effectué par des pompes à sorption (Riber). C'est ce second groupe qui est représenté sur les figures 1.1 et 1.2.

L'enceinte, réalisée au Laboratoire, est un cylindre en acier inoxydable amagnétique, de 16 cm de diamètre intérieur et de 50 cm de hauteur. La paroi latérale, sur laquelle sont soudées une dizaine de brides permettant de fixer les accessoires, a 2 mm d'épaisseur. L'enceinte est reliée directement à la pompe ionique par la bride A comportant un joint Riber en cuivre OFHC.

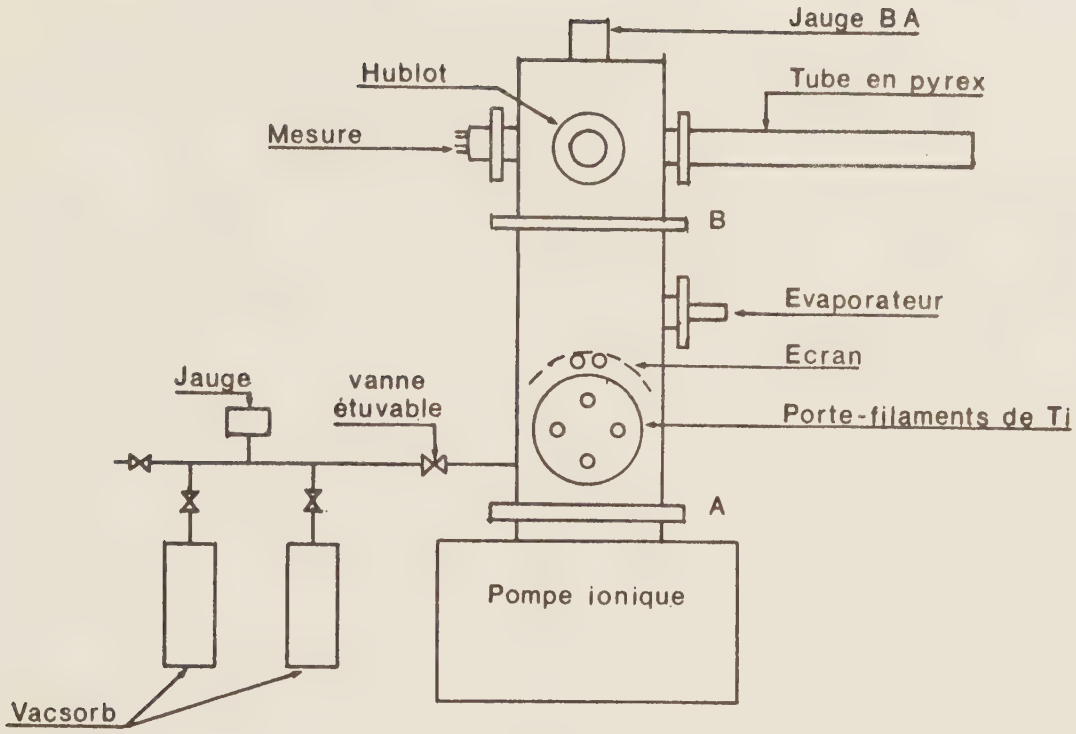


FIGURE 1.1

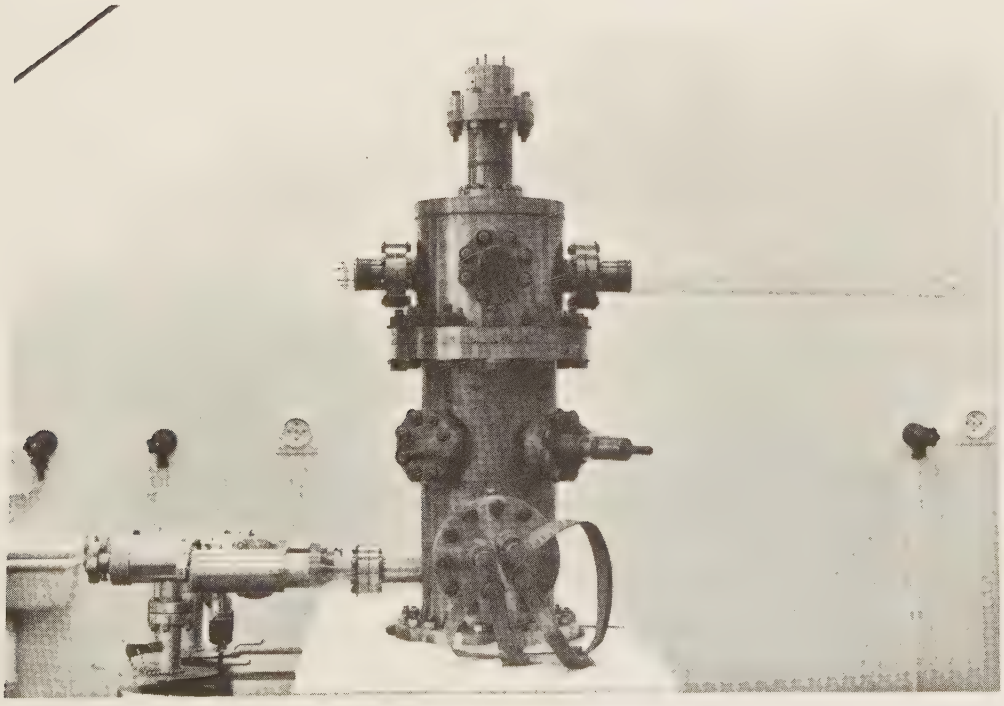


FIGURE 1.2

Elle se compose de deux parties, séparables, reliées entre elles par la bride B dont le joint, comme tous ceux du groupe à l'exception de celui de la bride A, est constitué par un fil d'aluminium de 1 mm de diamètre.

Dans la partie inférieure, juste au dessus de la pompe ionique on trouve un sublimateur à titane. Le porte-filaments peut recevoir 3 filaments. Il peut être démonté et les filaments changés sans toucher au reste de l'installation. Le titane sublimé se dépose sur les parois de l'enceinte (non refroidies) et à l'intérieur de la pompe ionique. A l'intérieur de l'enceinte, juste au dessus du porte-filaments, se trouve un écran constitué par une mince tôle d'inox, fixée sur un serpentin également en inox dans lequel circule de l'eau pour le refroidissement. Cet écran a pour but d'empêcher les atomes de titane de se déposer dans la partie supérieure de l'enceinte où se produit l'évaporation de nickel. Son principal inconvénient est évidemment de limiter la vitesse de pompage. Celle-ci peut être évaluée à 600l/s ; la pompe ionique seule ayant une vitesse de pompage de 200 l/s.

Au dessus du sublimateur à titane mais au dessous de la bride B on trouve, sur la paroi de l'enceinte, quatre passages de 38 mm de diamètre disposés à 90° les uns des autres. Deux de ceux-ci sont équipés d'électrodes basse tension et haute intensité (150 A) servant à amener le courant nécessaire pour chauffer le filament de nickel à sublimer. Les deux autres, inutilisés, sont obstrués par des brides pleines.

C'est dans la partie supérieure de l'enceinte, au dessus de la bride B, que se trouve le porte-échantillon. Il est fixé sur une petite nacelle en acier inoxydable amagnétique qui peut glisser sur deux rails horizontaux en acier inoxydable également. Ce système a pour but de permettre d'amener l'échantillon dans un tube en pyrex horizontal et perpendiculaire à la paroi latérale de l'enceinte lorsque l'on désire procéder à des mesures dans un champ magnétique. Le tube de pyrex est fixé par l'intermédiaire d'un raccord verre-métal et d'une bride en inox sur l'un des quatre passages de 38 mm de diamètre disposés à 90° les uns des autres sur la paroi de l'enceinte, au dessus de la bride B.

Le passage diamétralement opposé à celui qui porte le tube, est équipé d'un passage de courant à six électrodes qui servent de traversées pour les fils de mesure et pour l'alimentation électrique de l'échantillon.

Le déplacement de l'échantillon est obtenu à l'aide d'un dispositif qui sera décrit plus loin, commandé de l'extérieur par un passage magnétique tournant (marque L. M. M., type Ø 70) fixé sur le troisième passage latéral.

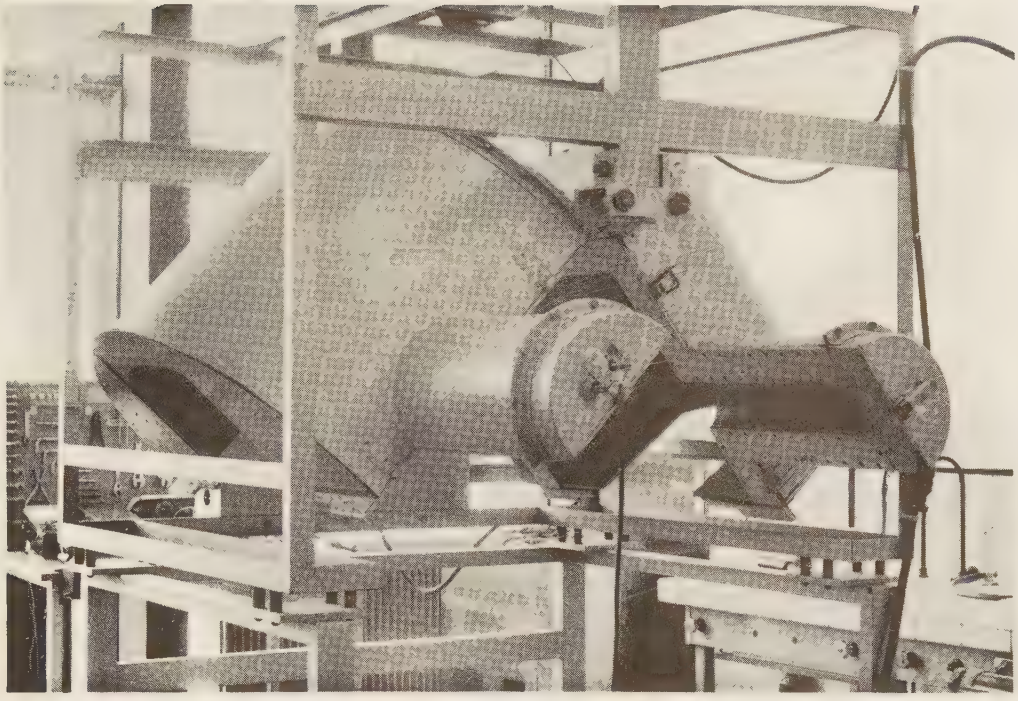


FIGURE 1.3a

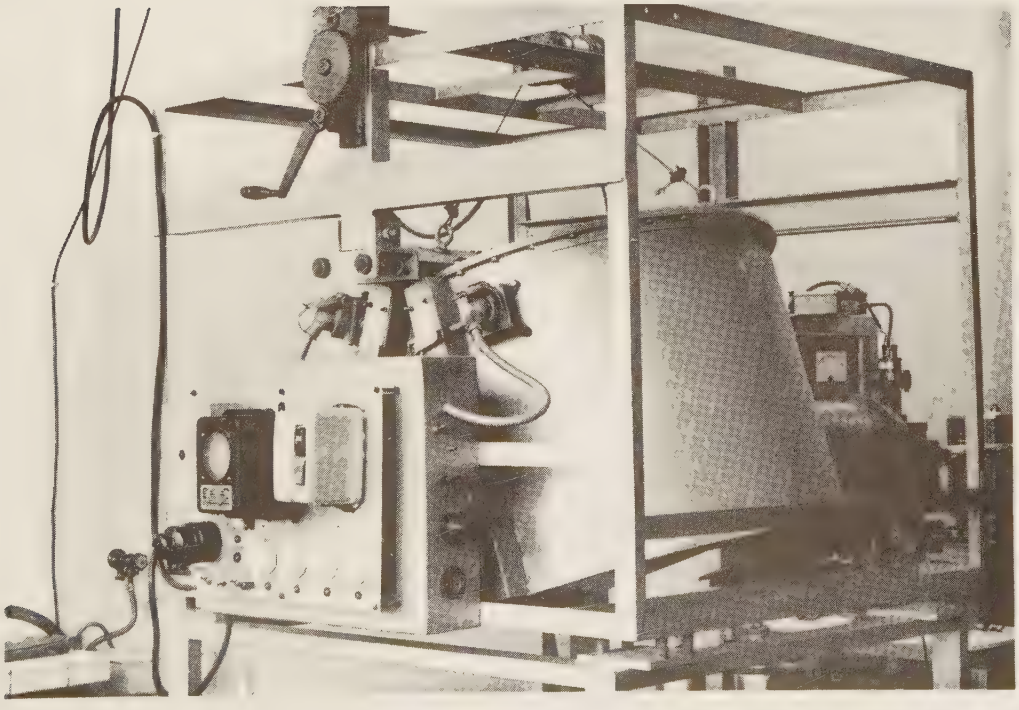


FIGURE 1.3b

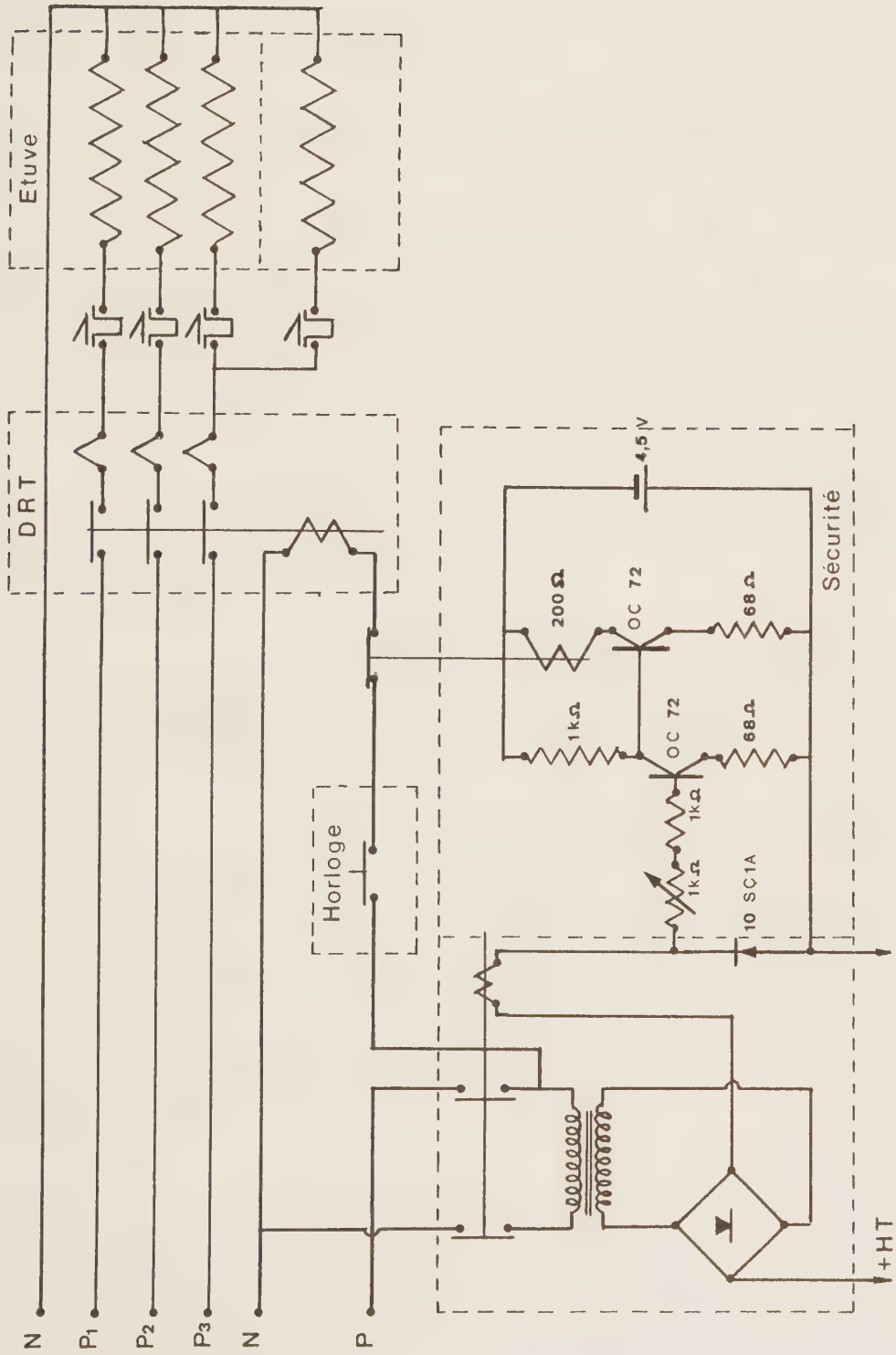

Etuve
DRT
Horloge
Sécurité
4,5 V
200 Ω
OC 72
68 Ω
1 kΩ
OC 72
68 Ω
1kΩ
1kΩ
10 SC1A
N
P1
P2
P3
N
P
+HT
vers la pompe

FIGURE 1.4

Le quatrième passage est équipé d'un hublot à travers lequel, grâce à un miroir incliné à 45°, placé devant le hublot à l'intérieur de l'enceinte, on peut contrôler la température du filament de nickel pendant l'évaporation à l'aide d'un pyromètre optique.

Au dessus de l'enceinte, un manchon en acier inoxydable contient la jauge Bayard et Alpert (Edwards, type IG 3 M).

Sur la paroi latérale, juste au dessus de la pompe ionique, un passage de 1,5 pouce de diamètre porte une vanne Riber étuvable, à joint métallique (cuivre) qui permet d'isoler l'ensemble constitué par la pompe ionique et l'enceinte de la ligne de pompage primaire. Celle-ci comporte deux pompes à sorption et une jauge à thermocouple de marques Riber. Les deux pompes à sorption peuvent être isolées par des vannes à joint Viton (Riber).

L'alimentation de la pompe ionique (marque Ultek, modèle 60-160) et celle du sublimateur à titane constituée simplement d'un alternostat monté au primaire d'un transformateur basse tension (12 V, 40 A) sont installées sur un rack voisin du groupe proprement dit.

Le système d'étuvage comprend : le dispositif interne à la pompe ionique qui permet de chauffer celle-ci à 150°C, les aimants restant en place, et une étuve, fabriquée également au Laboratoire (figure 1.3), qui permet de porter toute l'enceinte, y compris le tube en pyrex, à 350°C.

Le schéma électrique de la commande d'étuvage est représenté sur la figure 1.4. La puissance utilisable est de 7,5 kW. Quatre dispositifs à bilames thermiques permettent de fractionner le temps de passage du courant dans les résistances de chauffage pour éviter de dépasser la température maximum et pour obtenir une température sensiblement uniforme. Six thermocouples appliqués en divers points de l'enceinte ont permis de régler le système. Un contacteur tripolaire (D. R. T.) muni de relais thermiques assure la mise en marche et l'arrêt du système en même temps que sa protection contre d'éventuels court-circuits.

Ce contacteur peut être commandé à distance par un dispositif comprenant : une horloge qui permet la mise en marche et l'arrêt du système à une heure prédéterminée et un système de sécurité, introduit dans le circuit de retour de la haute tension (5 000 V) alimentant la pompe ionique. Ce dispositif comprend un relais à plage de régulation qui interrompt le chauffage lorsque la pression dans la pompe atteint 5.10^{-5} Torr et le rétablit lorsque la pression est redescendue à 2.10^{-6} Torr.

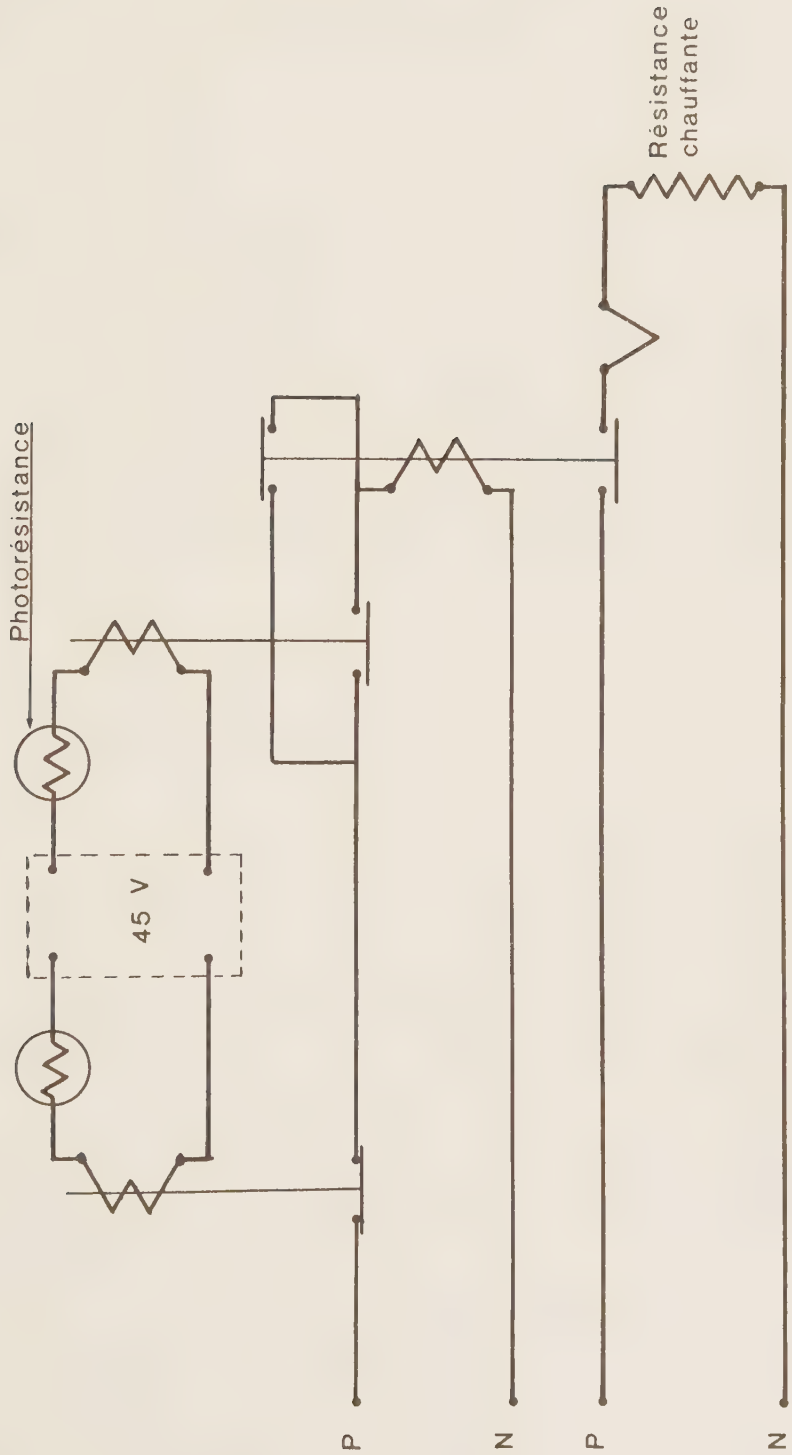


FIGURE 1.5

En outre, la tension d'alimentation de la bobine du D. R. T. est prise sur l'alimentation de la pompe ionique, après le disjoncteur de protection, de telle sorte que si le pompage s'arrête pour une raison quelconque (court-circuit dans la pompe ou son alimentation par exemple) l'étuvage est également interrompu.

Afin d'éviter que le tube de Pyrex ne soit soumis à de trop fortes tensions mécaniques qui pourraient provoquer son implosion, un dispositif comprenant deux thermocouples fixés à chaque extrémité du tube et reliés à un galvanomètre permet de mesurer en permanence la différence de température entre les extrémités du tube. Le galvanomètre (AOIP, type G 225) est du type à index lumineux de telle sorte que l'on peut, à l'aide de deux cellules photo-résistantes, appliquées contre l'échelle de lecture du galvanomètre, commander, par l'intermédiaire de relais (schéma de la figure 1.5), l'alimentation en courant électrique d'une résistance chauffante placée, dans l'étuve, à l'extrémité du tube en pyrex opposée à l'enceinte. Elle permet de maintenir la différence de température entre les extrémités du tube en dessous de 15°C.

II - *OBTENTION DE L'ULTRA-VIDE*

L'enceinte étant close, on plonge les deux pompes à sorption (Vacsorb) dans l'azote liquide pour les refroidir. Au bout d'un quart d'heure environ, on met le premier "vacsorb" en communication avec l'enceinte en ouvrant la vanne étuvable et la vanne d'isolement du "vacsorb". Dix minutes plus tard, la pression mesurée sur le ligne de pompage primaire avec la jauge à thermocouple est descendue à 5.10^{-1} Torr environ. On isole alors le premier "vacsorb" et on met en service le second. Il faut attendre une dizaine de minutes pour que la pression atteigne 8.10^{-3} Torr. On met alors en marche l'alimentation haute tension de la pompe ionique. La tension qu'elle fournit se fixe instantanément aux environs de 750 V. En même temps, une décharge lumineuse apparait dans la pompe. Le bombardement des parois par les ions qu'elle produit provoque un dégazage. La pression remonte jusque vers 3.10^{-2} Torr. Au bout de deux ou trois minutes, lorsque la pression est revenue en dessous de 10^{-2} Torr, la tension se met à osciller assez lentement entre 750 V et 1 000 V. Ce phénomène dure quelques dizaines de secondes au bout desquelles la décharge a disparu. La tension commence à monter assez vite, lorsqu'elle dépasse 2 000 V on isole l'enceinte en fermant la vanne étuvable, elle atteint alors rapidement 4 500 V.

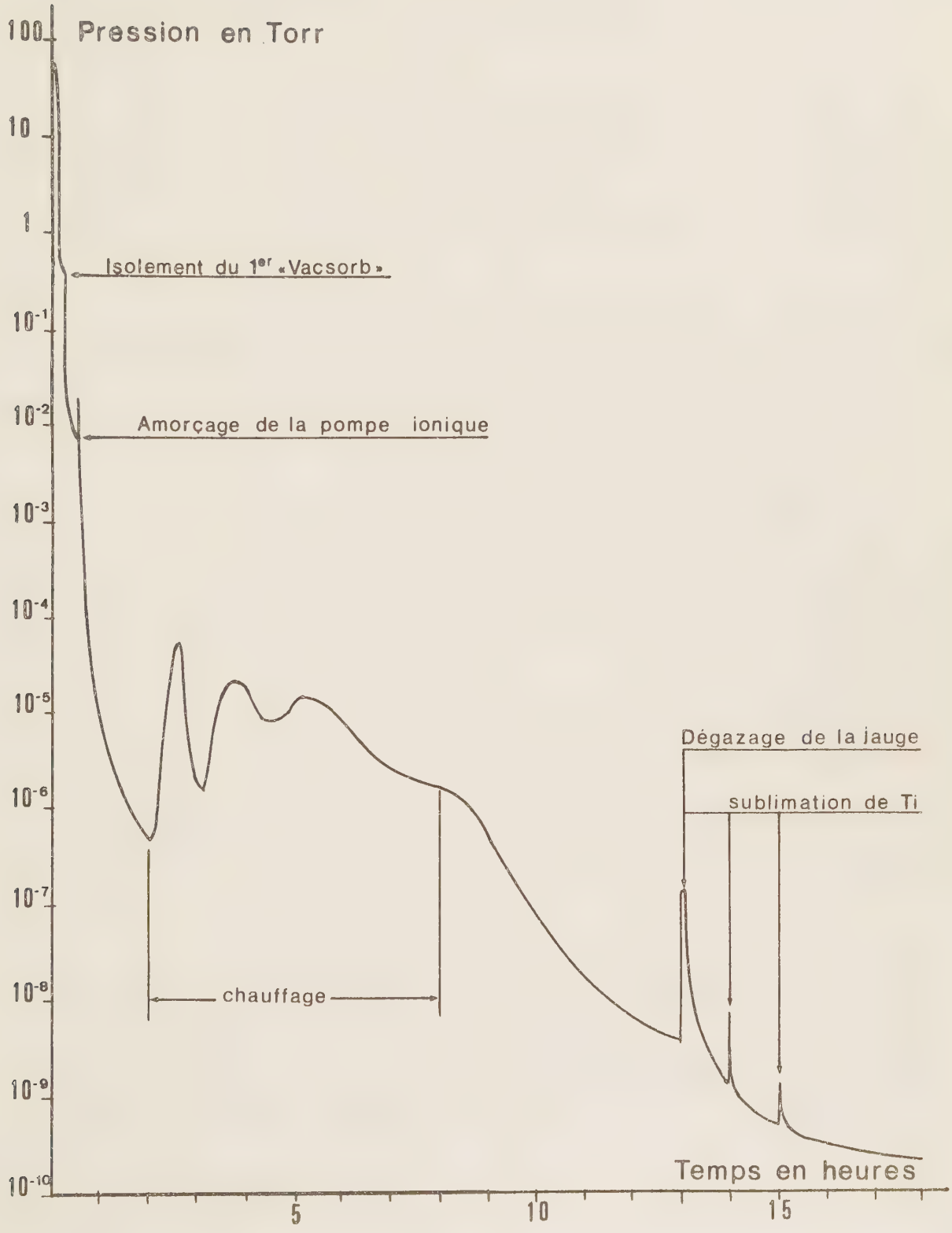

Pression en Torr
100
10
1
10^{-1}
10^{-2}
10^{-3}
10^{-4}
10^{-5}
10^{-6}
10^{-7}
10^{-8}
10^{-9}
10^{-10}
Isolement du 1er «Vacsorb»
Amorçage de la pompe ionique
chauffage
Dégazage de la jauge
sublimation de Ti
Temps en heures
5
10
15

FIGURE 1.6

La pompe est amorcée. La pression dans la pompe ionique, déterminée en mesurant le courant ionique qui est proportionnel à la pression est alors d'environ 5.10^{-5} Torr.

Le temps qui s'écoule entre l'instant où on enclenche la haute tension et celui où la pompe est amorcée n'excède pas 5 minutes en général. Cependant, lorsque la pompe est restée très longtemps à la pression atmosphérique et spécialement lorsque l'atmosphère est saturée et humidifiée, le temps nécessaire pour l'amorçage est beaucoup plus long (20 à 30 minutes).

Pour faciliter l'amorçage, j'ai disposé à l'intérieur de la pompe ionique, une grille à maille large en acier inoxydable, reliée à la masse. Elle isole électriquement la zone de pompage proprement dite du reste de l'installation de telle façon que la décharge gazeuse soit limitée à cette zone de pompage ce qui réduit la quantité de gaz désorbée qui doit être pompée par le "vacsorb".

Pour la même raison, lorsqu'à la fin d'une manipulation il faut ramener l'enceinte à la pression atmosphérique pour retirer l'échantillon étudié, j'ai toujours rempli le système avec de l'azote sec, sous une pression supérieure ou égale à une atmosphère, avant d'ouvrir l'enceinte. Ceci a pour effet de saturer les sites d'adsorption avec de l'azote, beaucoup moins gênante lors de la remise en marche de la pompe que la vapeur d'eau atmosphérique.

Lorsque la pompe ionique est amorcée, la pression diminue de 5.10^{-5} Torr à 5.10^{-7} Torr en une heure environ. Pendant ce temps, on procède au dégazage des filaments de nickel et de titane en les chauffant progressivement jusqu'à la température de sublimation. Ceci entraîne évidemment des remontées de pression qui n'ont pas été reportées sur la figure 1.6 qui représente la pression dans le système en fonction du temps. Pour accélérer la descente en pression, on peut sublimer un peu le titane.

Lorsque la pression atteint 5.10^{-7} Torr, on met l'étuve en place autour de l'enceinte et on déclenche simultanément l'étuvage de l'enceinte et de la pompe. La pression remonte alors assez rapidement (1/2 heure) au dessus de 10^{-5} Torr. Si elle dépasse 5.10^{-5} Torr le dispositif de sécurité interrompt le chauffage. Lorsque la pression est revenue à 2.10^{-6} Torr, le chauffage est rétabli automatiquement.

Pendant tout le temps que dure la montée en température (3h30 environ) la pression reste au voisinage de 10^{-5} Torr. Elle présente un premier maximum lorsque la température est voisine de 120°C et un second aux alentours de 300°C. Ensuite elle diminue régulièrement. Au bout de six heures, le chauffage est interrompu et le système revient en sept ou huit heures à la température ambiante. La pression est alors de l'ordre de 5.10^{-9} Torr. La sublimation de titane permet de l'amener en deux ou trois heures aux environs de 3.10^{-10} Torr. Le meilleur vide obtenu, au bout de 48 heures, est d'environ $1,5.10^{-10}$ Torr. Compte tenu de la disposition de la jauge (figure 1.1) il est probable que cette valeur est entachée d'une erreur par excès et que le vide limite de l'installation se situe dans la gamme des 10^{-11} Torr.

Tant que l'étuve est en place, il n'est pas possible d'utiliser la jauge Bayard et Alpert. On ne connait la pression que par la mesure du courant débité par l'alimentation de la pompe ionique. Or, il apparait toujours des courants de fuites de quelques µA, le long des isolants, entre anode et cathode dans la pompe si bien que les indications obtenues ne sont plus valables lorsque la pression est inférieure à 10^{-8} Torr. Le courant de fuite qui s'ajoute au courant d'ions devenant du même ordre de grandeur que celui-ci.

D'autre part, aux pressions plus élevées, on observe toujours un écart, d'une demi-puissance de dix au moins, entre les indications de la jauge et celles déduites de la mesure du "courant pompe". La pression indiquée par la jauge étant supérieure.

III - *LA PREPARATION DES ECHANTILLONS*

III.1 - *Le support de condensation*

Dans la plupart des cas, j'ai utilisé comme support des plaquettes (60 × 16 × 2 mm) en verre "vycor" (96 % de silice et 4 % d'anhydride borique), polies optiquement, dont la température maximum d'utilisation est 900°C. Elles ont été nettoyées en les plongeant dans les vapeurs nitreuses résultant de l'action de l'acide nitrique avec une faible quantité d'alcool éthylique [3], puis lavées plusieurs fois dans l'eau bi-distillée et enfin plongées dans l'alcool isopropylique.

J'ai également utilisé, dans certains cas,des plaquettes de mica, de mêmes dimensions, qui étaient clivées juste avant d'être placées sous vide pour le dépôt des électrodes de mesure.

III.2 - *Les électrodes de mesure*

Elles sont constituées avec le même nickel de haute pureté que l'échantillon à étudier, déposé par évaporation sous vide (5.10^{-6} Torr) à partir d'un creuset en oxyde de beryllium chauffé par effet Joule. On obtient ainsi des vitesses de dépôt de 3 à 3,5 Å par seconde sur un support placé à 22 cm au dessus du creuset. Le dépôt est effectué dans un groupe d'évaporation classique comprenant une pompe primaire à palette et une pompe à diffusion d'huile séparée de l'enceinte d'évaporation en pyrex par un piège à azote liquide. Les dépôts obtenus, de 4 000 Å à 5 000 Å d'épaisseur ont une excellente adhérence sur le support. La forme et les dimensions de ces électrodes sont définies en appliquant contre le support, pendant l'évaporation, un cache découpé par photogravure dans une plaquette de cuivre de 0,1 mm d'épaisseur. Ceci assure une très bonne précision dans les dimensions.

J'ai utilisé des électrodes de formes différentes suivant les mesures à effectuer. Elles sont représentées sur la figure 1.7.

a) Mesure de Résistivité b) Mesure d'effet Hall

FIGURE 1.7

Les supports, munis des électrodes de mesure, sont conservés sous vide, dans l'enceinte où ils ont été préparés, jusqu'à leur transfert dans le groupe d'ultra-vide.

III.3 - *Le porte-échantillon*

Le dispositif porte-échantillon, installé dans l'enceinte à ultra-vide doit satisfaire deux exigences :

a) Il doit permettre de procéder au dépôt du film et à son étude complète sans que l'on ait jamais à "casser" le vide.

b) Il doit permettre de déplacer l'échantillon horizontalement sur une distance d'environ 35 cm pour l'amener à l'intérieur du tube en pyrex placé, lors des mesures d'effet Hall, dans l'entrefer d'un électro-aimant.

Pour cela, le support en verre ayant reçu les électrodes de mesure, est installé, comme le montre la vue en coupe de la figure 1.8, sur une nacelle en acier inoxydable amagnétique munie d'un "cache" amovible C, formé d'une plaquette également en acier inoxydable amagnétique dans laquelle on a découpé, avec soin, une ouverture qui définit la géométrie de l'échantillon.

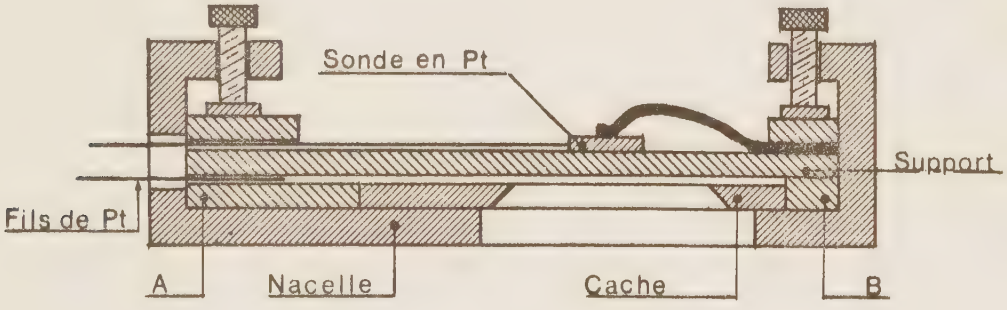
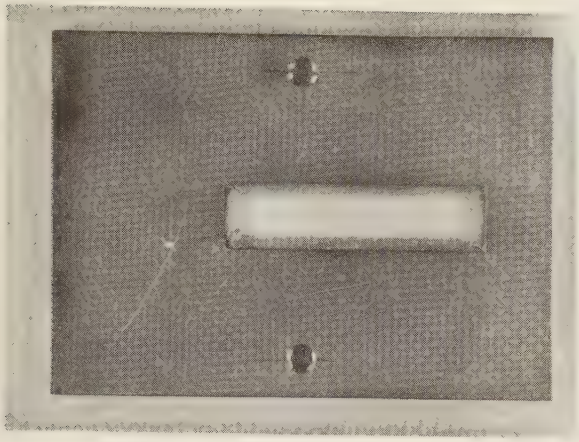
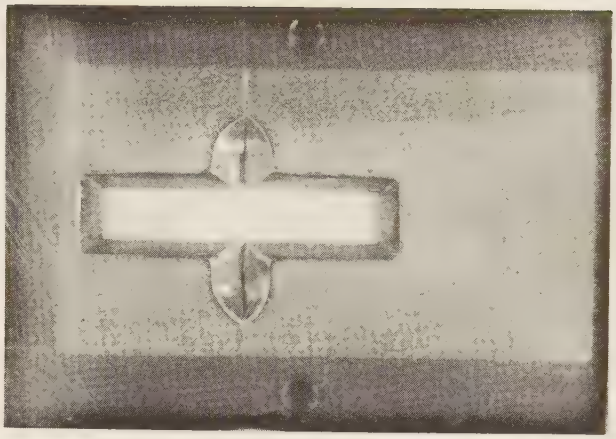


FIGURE 1.8

Ce cache qui diffère selon le phénomène étudié (figure 1.9) doit rester en place pendant toute la manipulation, (il faudrait ramener l'enceinte à la pression atmosphérique pour le retirer).



a) Résistivité



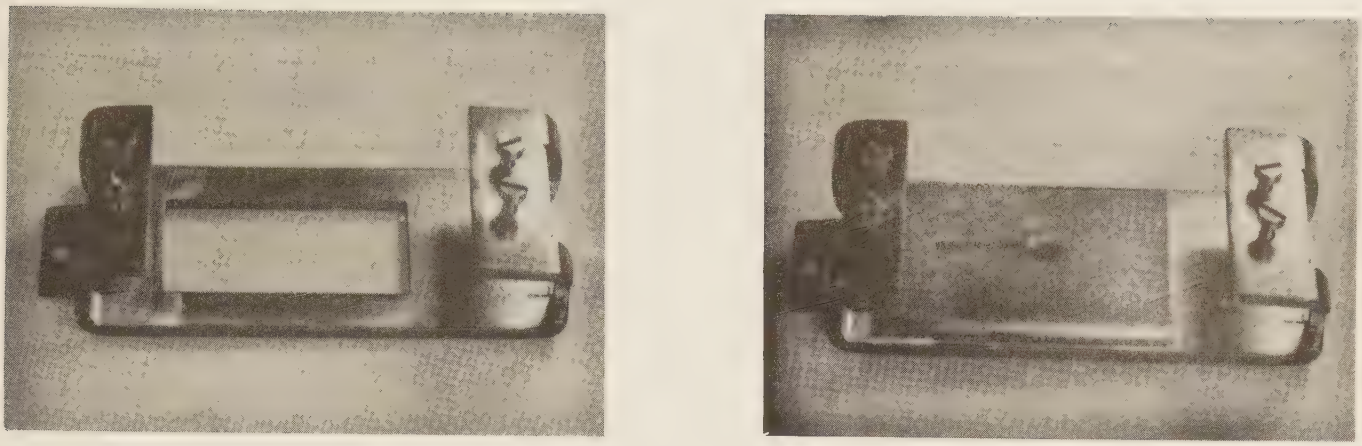
b) Effet Hall

FIGURE 1.9

Il ne peut donc être appliqué contre le support car il provoquerait un court-circuit entre les électrodes de mesure. C'est pourquoi le support repose à chaque extrémité sur deux plaquettes en verre "vycor" A et B qui l'isolent de la nacelle et du cache. Les contacts électriques sont "repris" à une extrémité du support, par serrage de fils de platine recuit entre le support et la plaquette A. Le cache et les plaquettes A et B ont une épaisseur de 2 mm. Du fait de la présence des fils sur la plaquette A et d'un petit épaulement sous la plaquette B, la distance de la face supérieure du cache à la face du support qui reçoit le dépôt est de l'ordre de 0,15 mm.

L'épaisseur importante du cache est nécessaire pour empêcher qu'il ne se déforme lors du recuit du film ou lors des mesures en fonction de la température et qu'il ne provoque des court-circuits entre les électrodes de mesure. Le fait qu'il soit épais et qu'il ne soit pas appliqué contre le support pendant le dépôt va entraîner un effet de "pénombre" sur les bords du film. Afin de limiter cet effet, les bords de l'ouverture du cache qui définit les dimensions du film sont taillés en biseau (cf. figure 1.9).

Une sonde à résistance de platine destinée à mesurer la température est appliquée, à l'aide d'une lamelle de tantale formant ressort, sur la face du support opposée à celle qui reçoit le dépôt.



a b

FIGURE 1.10

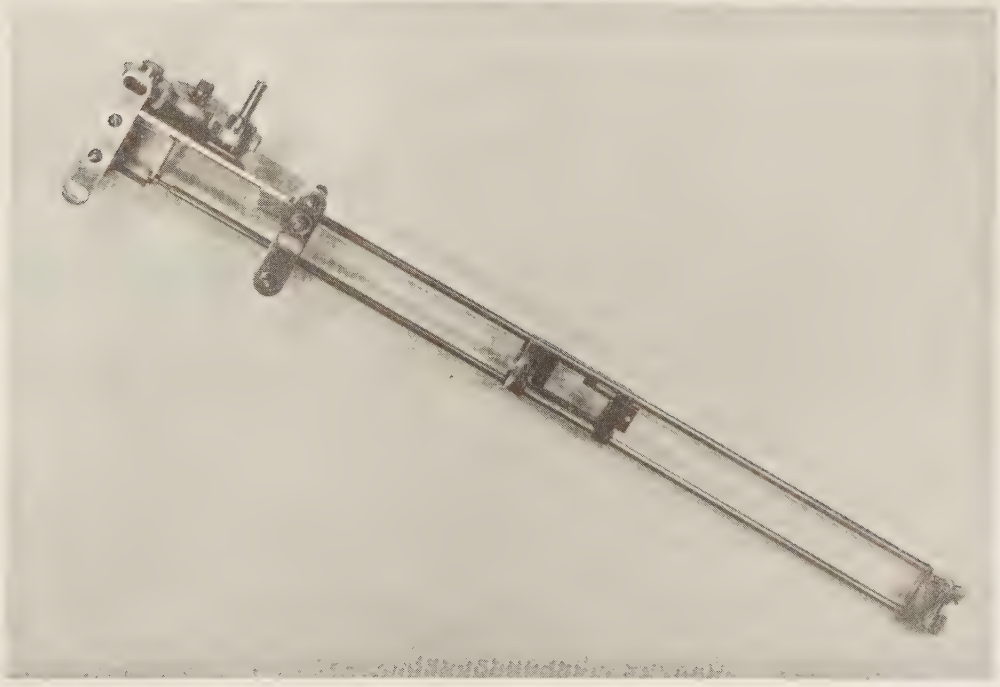


FIGURE 1.11

La nacelle est représentée sur la figure 1.10. Elle peut glisser sur deux rails constitués par des tiges d'acier inoxydable amagnétique de 4 mm de diamètre (figure 1.11). Son déplacement est obtenu grâce à un dispositif comportant une poulie à chaque extrémité du rail. Un fil genre "corde à piano" en acier inoxydable est tendu entre les poulies parallèlement au rail. Il s'enroule sur les poulies de façon à former une boucle. La rotation d'une des poulies entraine la translation de la butée, servant également de tendeur, fixée sur le fil. Cette butée pousse la nacelle dans un sens ou dans l'autre. La rotation de la poulie est commandée de l'extérieur par un passage magnétique tournant.

Lors de l'étude des propriétés de l'échantillon, la nacelle doit être dans le tube de pyrex. Dans cette position, les fils de mesure qui ne peuvent être recouverts d'aucun isolant, doivent être tendus. Or, ils ont une extrémité connectée à la lame et l'autre, par l'intermédiaire de petits dominos en inox, à une traversée de paroi diamètralement opposée au tube sur l'enceinte. Leur longueur est donc de l'ordre de 45 cm. Leur écartement, les uns par rapport aux autres, est maintenu de place en place par des petites plaquettes de mica très légères. Mais, lors de l'évaporation du nickel, la nacelle doit se trouver à l'intérieur de l'enceinte. Les fils doivent donc se replier sans s'emmêler à l'intérieur de l'enceinte. C'est la raison pour laquelle j'ai dû utiliser des fils de platine recuit, des fils de nickel auraient mieux convenu, notamment pour la mesure de l'effet Hall (cf. chapitre IV), mais le nickel, même recuit, est trop élastique et trop cassant.

III.4 - *La sublimation du nickel*

Le dépôt de nickel à étudier est obtenu à partir d'un filament de nickel de haute pureté (99,994 % - cf. annexe A) ayant la forme d'un ruban de 5,5 mm de long, 12,52 mm de large et 0,125 mm d'épaisseur avant sublimation. Ce ruban est tendu entre deux blocs de cuivre fixés chacun sur une traversée de courant basse tension (figure 1.12).

Les deux plaquettes recourbée en nickel sont destinées à éviter que du cuivre ne se dépose sur le support. On peut en effet craindre que du fait de l'élévation de température au contact du ruban de nickel de faibles quantités de cuivre ne soient sublimées.

On amène le ruban de nickel à la température un peu inférieure au point de fusion (1 453°C) en le faisant parcourir par un courant électrique alternatif basse tension (4 V) de 120 A environ. Dans ces conditions, la partie centrale du ruban (à égale distance des blocs de cuivre) se sublime. La vitesse

de dépôt obtenue sur le support situé 15 cm au dessus du ruban est de l'ordre de 0,5 Å/s.

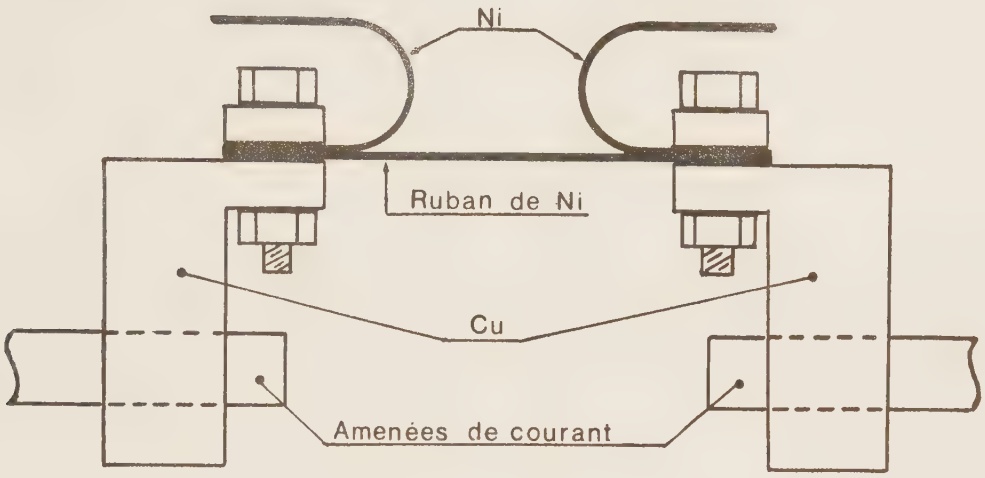


FIGURE 1.12

Afin d'éviter la rupture du filament on surveille constamment, à l'aide d'un pyromètre optique monochromatique (MECI, type PH 120), la température de la partie centrale, à travers un hublot et un miroir disposé dans l'enceinte. L'expérience ayant montré que le filament se rompt lorsque le pyromètre indique une température de 1 200°C, on maintient la température de la partie centrale du ruban aux environs de 1 180°C en agissant sur l'intensité du courant qui le traverse. Pour connaître la température exacte du ruban, il faut apporter des corrections aux indications du pyromètre |4| afin de tenir compte de l'absorption du miroir et du fait que le pouvoir émissif monochromatique du nickel n'est que de 0,36 |4|. Ainsi, une température de 1 200°C lue sur le pyromètre correspond à une température réelle du ruban supérieure à 1 320°C puisque la correction de pouvoir émissif est de l'ordre de 120°C |4|. La correction due à l'absorption du miroir peut être déterminée expérimentalement mais il ne m'est pas apparu qu'il était nécessaire de le faire, puisque l'objectif est simplement d'éviter la rupture du ruban de nickel.

Afin de réaliser le dépôt du film à étudier dans les meilleures conditions possibles, il est nécessaire de procéder, avant le dépôt proprement dit, à un dégazage soigné du ruban de nickel. Pendant les opérations de dégazage, la nacelle porte-échantillon est placée dans le tube en pyrex de manière qu'elle ne puisse recevoir de nickel. Les températures de filament dont il sera question ci-dessous sont celles lues sur le pyromètre.

On procède de la manière suivante :

a) Le ruban de nickel est chauffé par un courant de 100 A jusqu'à une température de l'ordre 1 000°C, sous une pression de l'ordre de 10^{-6} Torr, avant l'étuvage de l'enceinte, ce qui a pour effet de dégazer la plus grande partie des gaz occlus.

b) Le lendemain, après l'étuvage de l'enceinte, lorsque la pression est descendue à 3.10^{-10} Torr, on amène lentement le ruban de nickel à la température de 1 150°C. La vitesse de montée en température du filament est contrôlée manuellement de telle sorte que la pression dans l'enceinte, mesurée avec la jauge Bayard et Alpert, ne dépasse jamais 5.10^{-9} Torr.

Lorsque le pyromètre indique 1 150°C, le nickel se sublime très lentement. La température du filament étant maintenue constante, la pression diminue du fait que la quantité de gaz désorbée par le ruban diminue et aussi parce que le nickel déposé sur les parois de l'enceinte fait office de getter. Une demi-heure environ après le début de l'opération, la pression est revenue à 8.10^{-10} Torr. On porte alors la température du ruban à 1 175°C. La pression remonte au voisinage de 10^{-9} Torr puis redescend. Lorsqu'elle atteint à nouveau 6 ou 7.10^{-10} Torr, on arrête le chauffage du ruban. La durée totale de cette opération de dégazage est d'environ 45 minutes. Pendant ce temps, la température des parois de l'enceinte s'est évidemment élevée de quelques dizaines de degrés. C'est pourquoi on attend environ deux heures que les parois soient refroidies et que la pression soit revenue à 3.10^{-10} Torr pour procéder au dépôt, proprement dit.

c) Pour procéder au dépôt de l'échantillon, on ramène la nacelle à l'intérieur de l'enceinte de telle façon que l'ouverture du cache C de la figure 1.8 soit à la verticale du ruban de nickel, à 15 cm au dessus. On amène alors rapidement la température de la partie centrale du filament à 1 180°C. La pression remonte très rapidement à 7.10^{-10} Torr puis elle redescend en deux minutes environ à 5.10^{-10} Torr. Elle se maintient entre 4 et 5.10^{-10} Torr pendant toute la durée de l'évaporation. Dans le cas où l'évaporation se prolonge au delà de quelques minutes (il faut 30 minutes

environ pour déposer une lame de 800 à 1 000 Å d'épaisseur), les parois de l'enceinte vont s'échauffer, provoquant une lente remontée de pression. Pour l'éviter, on souffle de l'air comprimé sur la surface extérieure de l'enceinte.

Remarque Dans le cas des lames déposées en présence d'un champ électrique (cf. chapitre III) le porte-échantillon était fixé à l'intérieur de l'enceinte de façon que le substrat, destiné à recevoir le dépôt soit environ 0,5 cm au dessus du plan des rails. Ceux-ci étaient utilisés pour porter une plaquette de Tantale que l'on plaçait devant le porte-échantillon pendant le dégazage et que l'on retirait, en l'amenant dans le tube de pyrex lors du dépôt des films à étudier.

IV - *MESURE DES EPAISSEURS*

Lorsque l'étude d'un film est terminée, il est retiré de l'enceinte à ultra-vide. C'est alors que l'on mesure son épaisseur par la méthode interférométrique de Tolansky [5]. Le principe de cette méthode est bien connu. Elle consiste à former, en lumière monochromatique, les franges d'égale épaisseur d'un coin d'air délimité par le support du film étudié et par une lame semi-transparente (figure 1.13). Les franges, localisées sur la surface semi-transparente, sont observées à l'aide d'un microscope. Si on oriente les franges parallèlement à l'un des côtés du rectangle que forme le film, on obtient une figure d'interférence représentée schématiquement sur la figure 1.14. L'épaisseur a du film est alors :

$$a = \frac{\lambda}{2} \frac{x}{y}$$

λ étant la longueur d'onde de la radiation utilisée.

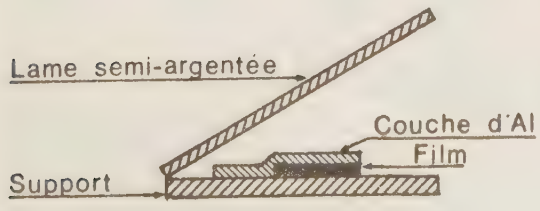


FIGURE 1.13

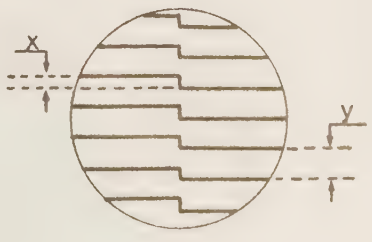


FIGURE 1.14

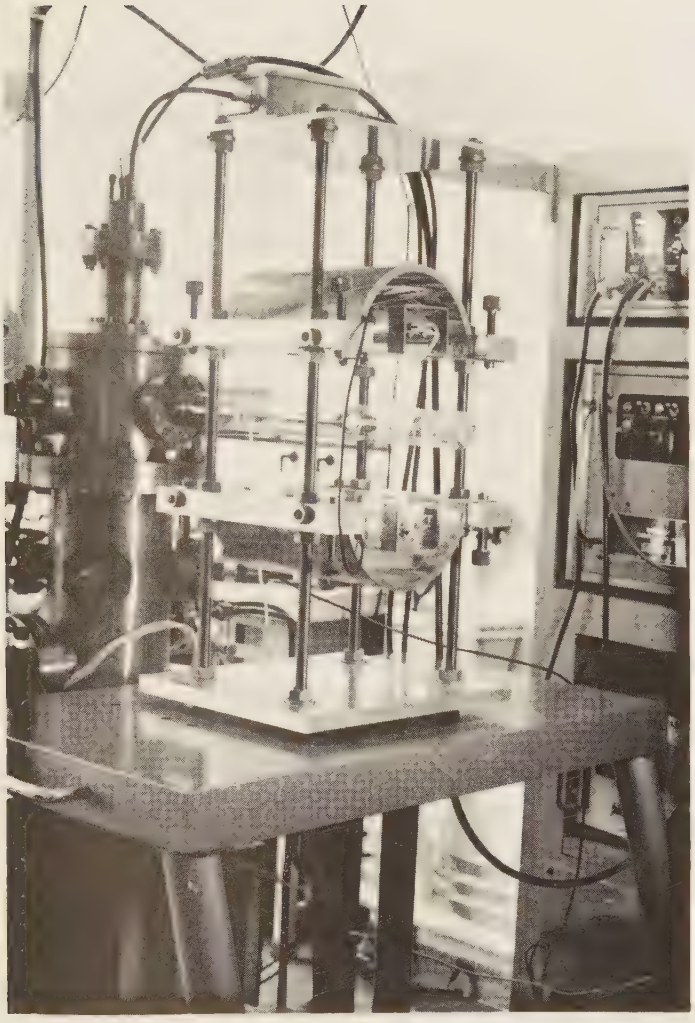


FIGURE 1.15

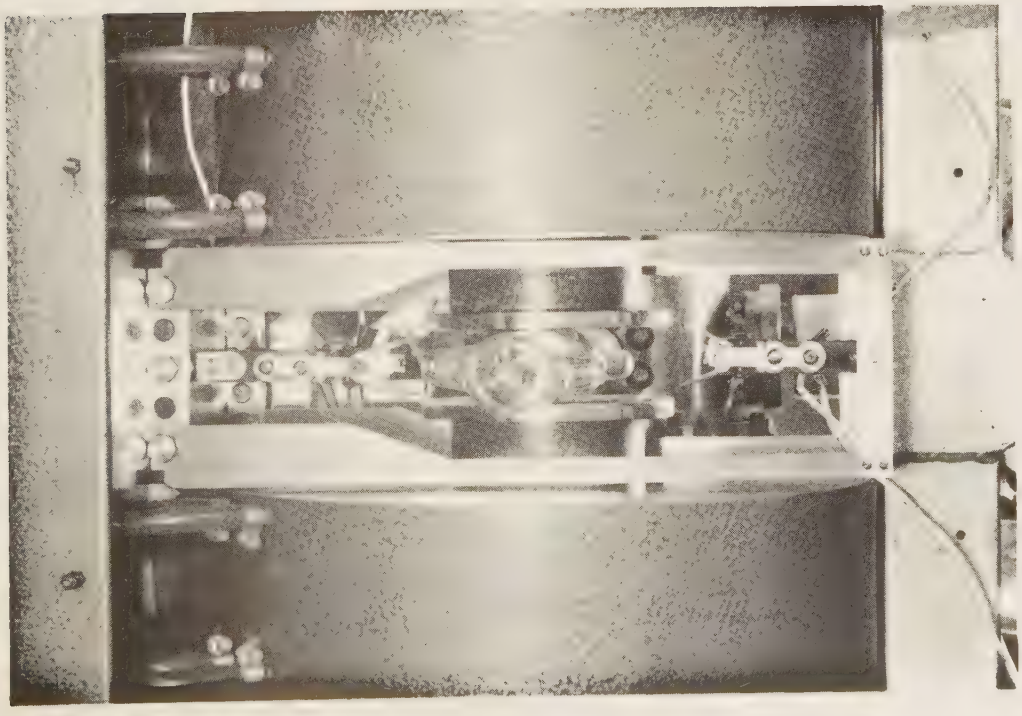


FIGURE 1.16

Dans la pratique, j'ai utilisé un dispositif interférentiel LEITZ adapté sur un microscope LEITZ, type Ortholux. Pour chaque dépôt, j'ai fait une microphotographie de la figure d'interférence et j'ai mesuré les longueurs x et y avec un lecteur de spectre. On peut en principe atteindre de cette façon un rapport $\frac{x}{y} = \frac{1}{100}$ ce qui permet de mesurer des épaisseurs de l'ordre de 30 Å (avec comme source lumineuse une lampe à vapeur de sodium). En fait, lorsque l'épaisseur à mesurer devient très faible (inférieure à 100 Å), la largeur des franges d'interférence devient du même ordre de grandeur que la hauteur x de la "marche" et la précision des mesures devient mauvaise. Il est donc pratiquement impossible de mesurer des épaisseurs inférieures à 50 Å.

Pour obtenir des franges très fines, il est nécessaire que le pouvoir réfléchissant des surfaces qui limitent le coin d'air soit identique pour les deux surfaces et qu'il soit élevé |5|. C'est pourquoi, avant de procéder aux mesures, j'ai recouvert le film et une partie du support par une couche d'aluminium d'environ 500 Å d'épaisseur. En procédant ainsi, on admet que la couche d'aluminium ne modifie en rien la dénivellation film-support, ce qui n'est pas démontré. Cela peut introduire une erreur supplémentaire sur la mesure des faibles épaisseurs.

En dessous de 150 Å, l'épaisseur ainsi mesurée est en général supérieure à "l'épaisseur équivalente" obtenue en pesant la masse déposée et en supposant qu'un échantillon très mince possède la même masse volumique que le métal massif |2| |5|. Cette épaisseur équivalente est le paramètre généralement utilisé dans les études de couches minces, c'est ce qui rend difficile la comparaison des résultats que j'ai obtenus pour des films très minces avec des travaux antérieurs.

V - *OBTENTION ET MESURE DES TEMPERATURES*

V.1 - *Le dispositif de chauffage des échantillons*

Ce dispositif doit permettre de porter le film à étudier à une température supérieure à son point de Curie (358° pour un échantillon massif) sans pour autant provoquer des remontées de pression trop importantes dans l'enceinte de travail. Pour cela, il faut absolument limiter la zone chauffée aux

éléments (support, nacelle, ...) qui sont voisins de l'échantillon. Il faut en particulier éviter de chauffer les parois de l'enceinte qui se mettraient à dégazer.

Le dispositif utilisé permet d'atteindre progressivement une température de 500°C à l'intérieur de l'enceinte tout en maintenant la pression en dessous de 10^{-8} Torr.

Il est constitué par deux ampoules en quartz dont le filament est un fil de tungstène enroulé en hélice, disposées symétriquement par rapport à l'échantillon. Chaque ampoule, d'une puissance de 500 W, est placée devant un réflecteur qui permet de concentrer les rayonnements émis autour de l'échantillon (figures 1.15 et 1.16). Ampoules et réflecteurs sont disposés à l'extérieur de l'enceinte à vide, autour du tube en pyrex ; l'échantillon étant placé à l'intérieur du tube lors du recuit et lors des mesures en fonction de la température.

En fait, j'ai utilisé deux dispositifs légèrement différents selon l'étude effectuée. Pour le recuit des films et pour l'étude de leur résistance en fonction de la température, j'ai employé le dispositif de la figure 1.15. Les deux ampoules sont disposées parallèlement au tube de pyrex, sur la normale au plan du film. Les deux réflecteurs cylindriques, en acier inoxydable, ont été usinés au Laboratoire. Ils permettent de former l'image du filament sur l'échantillon à étudier. Plus exactement, pour obtenir une température uniforme sur toute la surface du film (3 mm de large) il faut former l'image du filament un centimètre en deçà du film. Le réglage ayant été déterminé à l'air avec plusieurs thermocouples très fins.

Pour l'étude de l'effet Hall en fonction de la température, il faut chauffer l'échantillon dans l'entrefer de l'électroaimant. Il n'est plus possible de disposer les ampoules sur la normale au plan du film. Elles sont dans le plan du film et deux petits réflecteurs paraboliques permettent d'obtenir des faisceaux lumineux parallèles (figure 1.16).

Les ampoules sont conçues pour fonctionner sous une tension de 110 V ; on aurait donc pu les alimenter à partir du secteur alternatif 220 V au moyen d'un alternostat par exemple. Mais, lors des mesures d'effet Hall, les ampoules sont presque à l'intérieur de l'entrefer de l'électro-aimant et la force de Laplace due à l'action de l'induction magnétique sur le courant qui traverse le filament provoque d'importantes vibrations de ce dernier ce qui finalement entraîne sa rupture. On a donc alimenté les ampoules en courant continu, à partir

d'une alimentation régulée programmable ce qui a permis d'obtenir une très bonne stabilité de la température pendant les mesures et d'assurer une montée et une descente en température quasi linéaire en fonction du temps. Lors du recuit, par exemple, trois minuteries permettaient de prédéterminer le temps de montée (6h), le temps de recuit pendant lequel la température restait constante (12h) et le temps de descente.

Lors de l'étude de la résistance électrique des films déposés en présence d'un champ électrique, l'échantillon ne peut plus être amené dans le tube en pyrex. D'autre part, il est nécessaire de chauffer le support pendant le dépôt (cf. chapitre III). Il a donc fallu utiliser un autre dispositif, placé à l'intérieur de l'enceinte, pour chauffer l'échantillon. Il était constitué par un ruban de tantale (70 × 20 × 0,1 mm) tendu, 5 mm au dessus de la face du support qui ne reçoit pas le dépôt et parcouru par un courant alternatif basse tension. Ce ruban, porté ainsi à des températures supérieures à 2 000°C, chauffait le support par rayonnement. Malheureusement il chauffait aussi les surfaces intérieures de l'enceinte et il fallait plusieurs heures pour amener le support à 170°C dans les conditions de pression souhaitées (5.10^{-10} Torr). C'est pourquoi je n'ai pas dépassé la température de 170°C au cours de cette étude. L'obtention de températures plus élevées aurait demandé un autre système de chauffage qui n'aurait pas permis de maintenir une pression aussi basse pendant le dépôt.

V.2 - *Mesure des températures*

La température du support est mesurée à l'aide d'une sonde à résistance de platine (R. E. C., type 118 G) ayant la forme d'un petit parallélépipède rectangle (63,5 × 63,5 × 0,76 mm). Sa résistance nominale à 0°C est de 100 Ω. Elle est appliquée par une lame de tantale formant ressort contre la face du support qui ne reçoit pas le dépôt (cf. figure 1.8).

La résistance de la sonde est mesurée au moyen d'un enregistreur travaillant en pont de Wheatstone à équilibrage automatique (AOIP, type GPE) ou, lorsqu'une plus grande précision est désirée, au moyen d'un pont de Wheatstone classique (AOIP, type B 20) mais la précision ainsi obtenue est un peu illusoire. En effet, la disposition de la sonde, toujours soumise directement au rayonnement de l'élément chauffant, fait que la température qu'elle indique est toujours supérieure à la température réelle du dépôt.

Pour évaluer l'importance de cette erreur systématique, j'ai procédé de la façon suivante : j'ai tout d'abord disposé deux sondes à résistances de platine sur un même support ; l'une à l'emplacement habituel de la sonde, sur la face supérieure du support, l'autre, à la place du dépôt (cf. figure 1.8). Puis, j'ai réglé le système de chauffage de manière que les températures indiquées par les deux sondes soient identiques dans toute la gamme des températures utilisées. Ensuite, j'ai déposé dans les conditions habituelles, une lame de nickel relativement épaisse (615 Å). Après avoir recuit la lame à 500°C (indication de la sonde), j'ai tracé la courbe représentant la résistance R de la lame en fonction de la température T_s indiquée par la sonde. Je me suis assuré de la reproductibilité des résultats obtenus en répétant l'opération de mesure de $R\ (T_s)$. Celle-ci étant excellente, j'ai repris l'étude de la résistance du film en fonction de la température mais en utilisant une seule des ampoules chauffantes, celle qui se trouve au dessus du support, du côté portant la sonde. Le dispositif de chauffage étant dissymétrique, j'ai obtenu une courbe $R\ (T'_s)$ différente de la précédente. Ensuite, j'ai recommencé cette opération mais en utilisant seulement l'ampoule qui se trouve en dessous de l'échantillon, du côté du support qui porte le film. J'ai obtenu une courbe $R\ (T''_s)$ différente des deux autres.

Ainsi, pour une même valeur R_o de la résistance du film, on obtient trois valeurs différentes de la température :

$$T'_{so} > T_{so} > T''_{so}$$

J'ai alors admis que la température réelle de l'échantillon correspondant à cette résistance R_o est :

$$T_o = \frac{T'_{so} + T''_{so}}{2} \qquad (1.1)$$

On obtient ainsi la courbe $R\ (T)$ donnant la résistance du film en fonction de sa température "réelle" T déterminée par la relation précédente.

On constate que la différence $T'_s - T$ est à peu près linéaire en T'_s et que pour $T'_s = 200°C$, $T'_s - T = 30°C$.

Je me suis servi de ce fait pour corriger les valeurs de la température mesurée avec la sonde lors de l'étude des films déposés en présence d'un champ électrique (chapitre III) ; le système de chauffage utilisé dans ce cas étant dissymétrique (cf. § V.1).

Pour déterminer la température "réelle" de l'échantillon lors des autres études, j'ai utilisé le fait que la courbe $T_s - T = f(T_s)$ est également une droite qui pour $T_s = 200°C$ donne $T_s - T = 9,5°C$. (A la température ambiante, on a évidemment $T_s = T'_s = T''_s = T$).

Dans la suite, les températures indiquées seront les températures "réelles".

Une autre erreur systématique est due à la résistance des fils reliant la sonde à l'appareil de mesure. Un montage à 3 fils aurait permis de l'éliminer mais, étant donné l'ordre de grandeur de l'erreur due à la position de la sonde, il ne m'a pas paru utile de compliquer l'installation sous vide de l'échantillon. Je n'ai donc utilisé trois fils qu'entre l'appareil de mesure et la traversée de paroi de l'enceinte. Il subsiste une erreur due aux fils qui se trouvent à l'intérieur de l'enceinte. Pour réduire cette erreur j'ai, pour chaque film étudié, mesuré, à la température ambiante, la résistance de ces fils en établissant un court-circuit entre eux au niveau de la sonde. Leur résistance de l'ordre de 2,8 Ω peut être ensuite retranchée des valeurs lues de la résistance de sonde. Certes, lorsque la température de l'échantillon augmente, celle des fils qui relient la sonde à la traversée de paroi augmente également. Un essai, effectué en laissant le court-circuit en place au niveau de la sonde, m'a permis de constater que la résistance des fils ne dépassait pas 4,2 Ω à 425°C (la température était mesurée avec une seconde sonde). J'en ai tenu compte dans l'évaluation de la température "réelle". Mais, même si on néglige cette variation de résistance des fils en fonction de la température, l'erreur ainsi commise à 425°C n'est que de 0,6 %. Erreur qui est à peine supérieure à l'erreur propre du pont et à celle due à l'échauffement de la sonde résultant du passage du courant de mesure (< 3 mA).

On peut apprécier la précision des mesures de température en remarquant que lors de la mesure de la température de Curie d'une dizaine de lames d'épaisseurs supérieurs à 300 Å, c'est-à-dire des lames possédant, en principe, le même point de Curie, les écarts observés par rapport à la moyenne sont tous inférieurs ou égaux à 8°C, ce qui correspond à une erreur relative de l'ordre de 2,3 %.

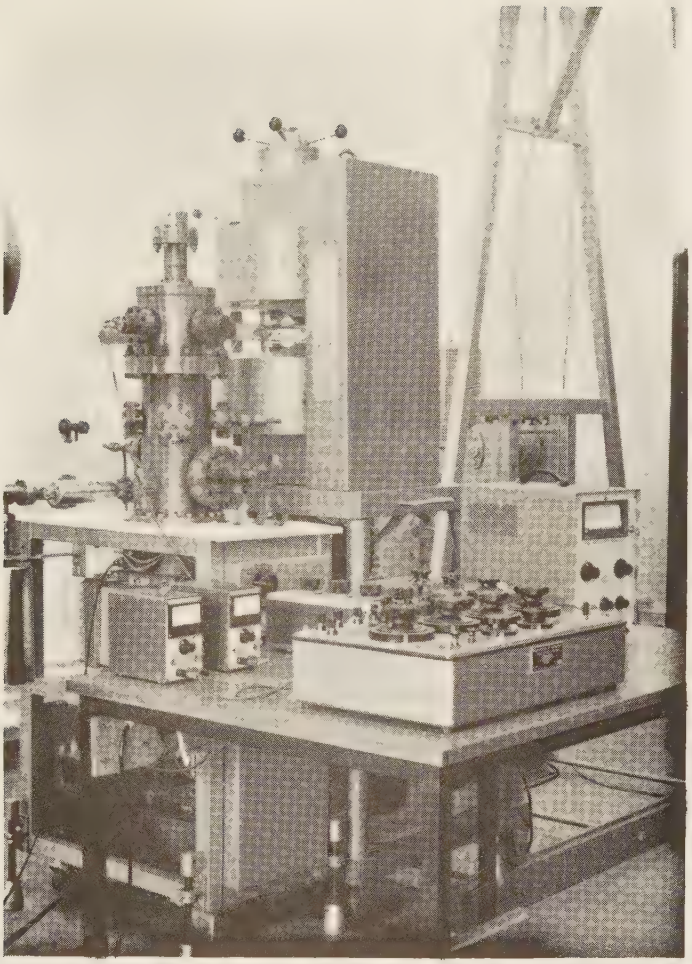


FIGURE 1.17

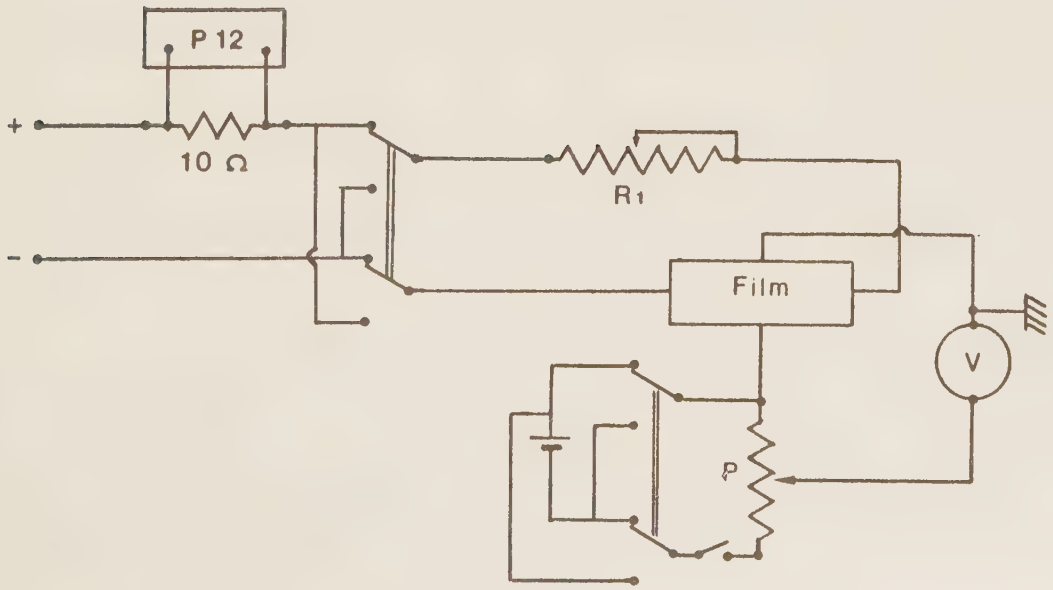


FIGURE 1.18

VI - MESURE DE L'EFFET HALL

VI.1 - *Production d'un champ magnétique sous vide*

On utilise un électro-aimant d'un modèle standard (Brucker, type B.E.10 C.8). Il est installé sur un chariot se déplaçant sur deux rails disposés sur le sol du Laboratoire. Dans la position de mesure, l'électro-aimant est amené près de groupe d'ultra-vide de telle façon que le tube de pyrex pénètre dans l'entrefer (figure 1.17). La largeur de celui-ci qui est continûment variable entre 5 mm et 100 mm est alors ajustée de façon que les pôles soient aussi près que possible de la paroi extérieure du tube (figure 1.16). Une cale de 38,1 mm d'épaisseur permet de retrouver à chaque manipulation exactement la même largeur d'entrefer.

Lorsque l'expérience est terminée, on écarte les pièces polaires et, par un mouvement de translation du chariot, on éloigne l'électro-aimant du groupe. On peut alors ouvrir l'enceinte et remplacer l'échantillon étudié.

L'électro-aimant comporte quatre bobines excitatrices : deux bobines principales de 2 000 spires chacune et deux bobines d'appoint de 200 spires chacune. Elles sont refroidies par une circulation d'eau. Les deux bobines d'appoint, dont l'alimentation est séparée de celle des bobines principales, permettent d'améliorer l'homogénéïté du champ et de procéder à un réglage fin des valeurs de l'induction. Ceci autorise un réglage continu de l'induction entre quelques 10^{-4} T et 0,98 T dans l'entrefer de 38 mm utilisé. La puissance utilisée pour obtenir une induction de 0,98 T est de 1,2 kW (tension 120 V, intensité 10 A).

L'appareil est utilisé sans pièces polaires, le diamètre des noyaux polaires étant de 100 mm. L'homogénéïté du champ est amplement suffisante pour les mesures envisagées puisque l'on obtient $\Delta B/B < 10^{-3}$ dans un volume de 20 mm de diamètre au centre d'un entrefer de 38 mm pour une induction de 0,5 T alors que les films étudiés sont des rectangles de 12 mm sur 3 mm.

L'étalonnage de l'appareil, fourni par le constructeur, a été vérifié à l'aide d'une sonde semi-conductrice à effet Hall (Siemens), elle même étalonnée dans des champs inférieurs ou égaux à 0,1 T grâce à un jeu de bobines d'Helmoltz. La mesure de la tension de Hall délivrée par cette sonde était faite à l'aide d'un montage semblable à celui décrit ci-dessous. L'étalonnage de l'électro-aimant a été répété plusieurs fois à quelques semaines d'intervalle sans que l'on note de variation.

VI.2 - *Mesure de la tension de Hall*

Le schéma de principe du montage de mesure de la tension de Hall est représenté sur la figure 1.18. Le courant qui parcourt l'échantillon est fourni par une alimentation stabilisée à transistors. Son intensité, en général 1 mA, est déterminée en mesurant avec un potentiomètre de précision (AOIP, type P 12) la tension aux bornes d'une résistance bobinée de précision, à faible coefficient de température, de valeur 10 Ω, disposée en série avec le film à étudier. On mesure ainsi 1 mA à 0,3 µA près. Une autre résistance R_1 de valeur très supérieure à celle du film est également placée en série avec celui-ci. Son rôle est de limiter l'importance des variations d'intensité du courant qui résultent de la variation de résistance du film en fonction du champ magnétique appliqué. Un inverseur permet de renverser, en cours de mesure, le sens de parcours du courant dans l'échantillon.

La tension de Hall est mesurée à l'aide d'un microvoltmètre électronique Keithley, type 150 A, dont l'impédance d'entrée varie de 1 MΩ sur l'échelle 1 µV à 100 MΩ sur l'échelle 100 µV et au dessus. Il permet de mesurer des tensions positives ou négatives de 0,1 µV avec une précision de 2 %.

Un montage potentiométrique comprenant une pile de bonne stabilité, un potentiomètre de qualité P et un inverseur de polarité permet de compenser la tension résiduelle qui existe en l'absence de champ magnétique entre les sondes de Hall. Cette tension est essentiellement due au fait qu'il est à peu près impossible de disposer les deux sondes de Hall de manière parfaitement symétrique. Elles ne sont donc pas sur la même équipotentielle et la différence de potentiel qui en résulte peut atteindre, pour les films étudiés, quelques centaines de microvolts.

Il est évident, étant donné l'ordre de grandeur des tensions à mesurer (quelques µV), qu'il faut apporter le plus grand soin à la réalisation de ce montage. Nous reviendrons au chapitre IV sur les précautions prises en envisageant les phénomènes parasites qui peuvent perturber la mesure de l'effet Hall.

Pour obtenir correctement la relation qui lie la tension de Hall à l'induction magnétique, il est nécessaire que le vecteur induction soit normal au plan du film. Pour permettre de réaliser cette condition, le groupe d'évaporation est monté sur vérins. L'électro-aimant étant dans la position de mesure, la largeur de l'entrefer est choisie de manière que les pôles de l'aimant soient à environ 1 cm des parois du tube de pyrex. L'échantillon à étudier étant

disposé dans le tube de pyrex, à l'intérieur de l'entrefer de l'électro-aimant, on alimente celui-ci de manière à ce qu'il crée une induction de l'ordre de 0,1 T. Puis, on agit doucement sur les vérins du groupe de façon à déterminer la position pour laquelle la tension de Hall mesurée est maximum : c'est la position cherchée.

VII - *MESURE DES RESISTANCES*

Lorsque la résistance de la lame étudiée est élevée, c'est le cas pour les lames très minces, la résistance des fils qui relient l'appareil de mesure à la lame est négligeable (2,8 Ω à la température ambiante), et on utilise un pont de Wheatstone classique (AOIP, type B 20). Mais ce n'est plus le cas lorsque la résistance de la lame est inférieure à 300 Ω.

Pour les lames très épaisses, de résistances inférieures ou égales à 10 Ω à la température ambiante, j'ai encore utilisé le pont AOIP, type B 20 mais monté en pont double de Thomson. Malheureusement, cet appareil ne permet pas de mesurer, dans ces conditions, des résistances supérieures à 10 Ω. C'est pourquoi, pour les lames d'épaisseurs intermédiaires, c'est-à-dire, pour la grande majorité des lames étudiées, j'ai employé la méthode classique de mesure de la tension et de l'intensité dite "montage aval". Le circuit d'alimentation de la lame et de mesure de l'intensité du courant est identique à celui utilisé pour mesurer l'effet Hall mais le voltmètre électronique est branché directement aux bornes du film, deux contacts supplémentaires ayant été déposés par évaporation à cet effet (cf. figure 1.18).

Chapitre II

Structure et propriétés électriques des films

I - PURETE DES DEPOTS OBTENUS

La pollution d'un film préparé par évaporation sous vide peut provenir :

a) Des chocs entre les atomes évaporés et les molécules du gaz résiduel sur le trajet évaporateur-substrat. Cet effet devient négligeable dès que l'on opère sous une pression inférieure à 10^{-6} Torr |9|.

b) Des molécules gazeuses adsorbées par le dépôt au cours de l'évaporation. La surface adsorbante se renouvelant constamment, on peut admettre que toutes les molécules de gaz qui heurtent la surface sont piégées.
Le nombre n de molécules qui frappent l'unité de surface pendant l'unité de temps et donné par la loi de Graham :

$$n = 3{,}51\ 10^{22}\ \frac{p}{\sqrt{M.T}} \qquad (2.1)$$

p est la pression du gaz exprimée en Torr, M sa masse moléculaire et T sa température absolue.

Dans le même temps, le nombre N des atomes de nickel qui adhèrent au substrat d'aire unité peut être évalué en considérant le dépôt comme un monocristal.

On obtient :

$$N = 9{,}12\ 10^{14}\ S$$

S est la vitesse de dépôt exprimée en $\mathring{A}/s$

On constate que le taux de pollution n/N sera d'autant plus petit que p/S sera plus petit.

Remarquons que l'hypothèse du piégeage de toutes les molécules qui heurtent la surface du dépôt n'est valable que pour les gaz chimi-sorbés. Dans le cas d'adsorption physique, le temps de séjour de la molécule de gaz sur la surface adsorbante étant de l'ordre de 10^{-13} s, il faut remplacer 2.1 par la relation :

$$n = 3{,}51\ 10^{22}\ \frac{p}{\sqrt{M\ T}}\ \tau_0\ e^{\frac{q_d}{RT_s}} \qquad (2.2)$$

q_d est la chaleur latente de désorption, T_s la température absolue de la surface adsorbante, R la constante des gaz parfaits et τ_0 une constante de l'ordre de 10^{-13} s.

Autrement dit, seule la contamination due aux gaz susceptibles d'être chimi-sorbés sera importante. Dans le cas du nickel, ce sont essentiellement les gaz suivants |13| :

O_2, H_2 (donc H_2O) CO, CO_2, CH_4, C_2H_2, C_2H_4

c) Des molécules de gaz adsorbées par le support préalablement au dépôt ou bien des molécules qui diffusent de l'intérieur du support vers le dépôt du fait, notamment, de l'échauffement du support qui résulte de la transformation en chaleur de l'énergie cinétique des atomes de nickel qui frappent sa surface et du rayonnement de l'évaporateur |1|.

On peut diminuer ce facteur en dégazant soigneusement le support sous vide avant de procéder au dépôt. Mais il résulte de la loi de Graham (2.1) que quelques dizaines de secondes suffisent pour qu'à la température ambiante et sous 10^{-6} Torr, un support propre soit recouvert d'une couche monomoléculaire de gaz (10^{15} molécules/cm^2).

d) Des atomes étrangers qui proviennent, par exemple, du creuset d'évaporation.

Cette dernière source de contamination est totalement éliminée par la méthode que j'ai employée qui consiste à sublimer un ruban de nickel en le chauffant directement par effet Joule sans utiliser ni creuset ni filament d'un matériau autre que le nickel (cf. chapitre I). En outre, le long dégazage imposé au ruban de nickel permet d'éliminer les couches superficielles qui auraient pu être polluées par les manipulations et les traitements mécaniques tels que le laminage, subis par le nickel avant d'être disposé dans l'enceinte d'évaporation. Enfin, le procédé qui consiste à sublimer le nickel en maintenant le ruban en dessous de la température de fusion permet de réduire, dans le film, la proportion, déjà très faible dans le ruban (cf. annexe A), des impuretés telles que le cobalt qui ont, à la température considérée, une tension de vapeur plus faible que celle du nickel.

Le principal défaut de cette méthode réside en ce qu'elle n'autorise que des vitesses de dépôt extrémement faibles. En effet, pour obtenir un dépôt d'épaisseur uniforme, il est nécessaire que la distance évaporateur-substrat soit assez grande |9|. C'est ce qui m'a amené à prendre cette distance égale à 15 cm. La vitesse de dépôt n'est alors que de 0,5 Å/s. Cependant, la pression totale pendant les évaporations ayant été maintenue à 5.10^{-10} Torr, ce qui garantit des pressions partielles de gaz chimiquement actifs inférieures ou égales à 10^{-10} Torr |3|, le taux de pollution du dépôt par les molécules de gaz adsorbées pendant l'évaporation reste inférieur à 10^{-4} ce qui est négligeable. D'autre part, l'étuvage de l'enceinte et de tout ce qu'elle renferme à 350°C pendant plusieurs heures, nécessaire pour obtenir des pressions aussi basses, garantit que la pollution due aux molécules gazeuses provenant du support est également négligeable.

On peut donc considérer que les films obtenus de cette manière sont d'une très haute pureté.

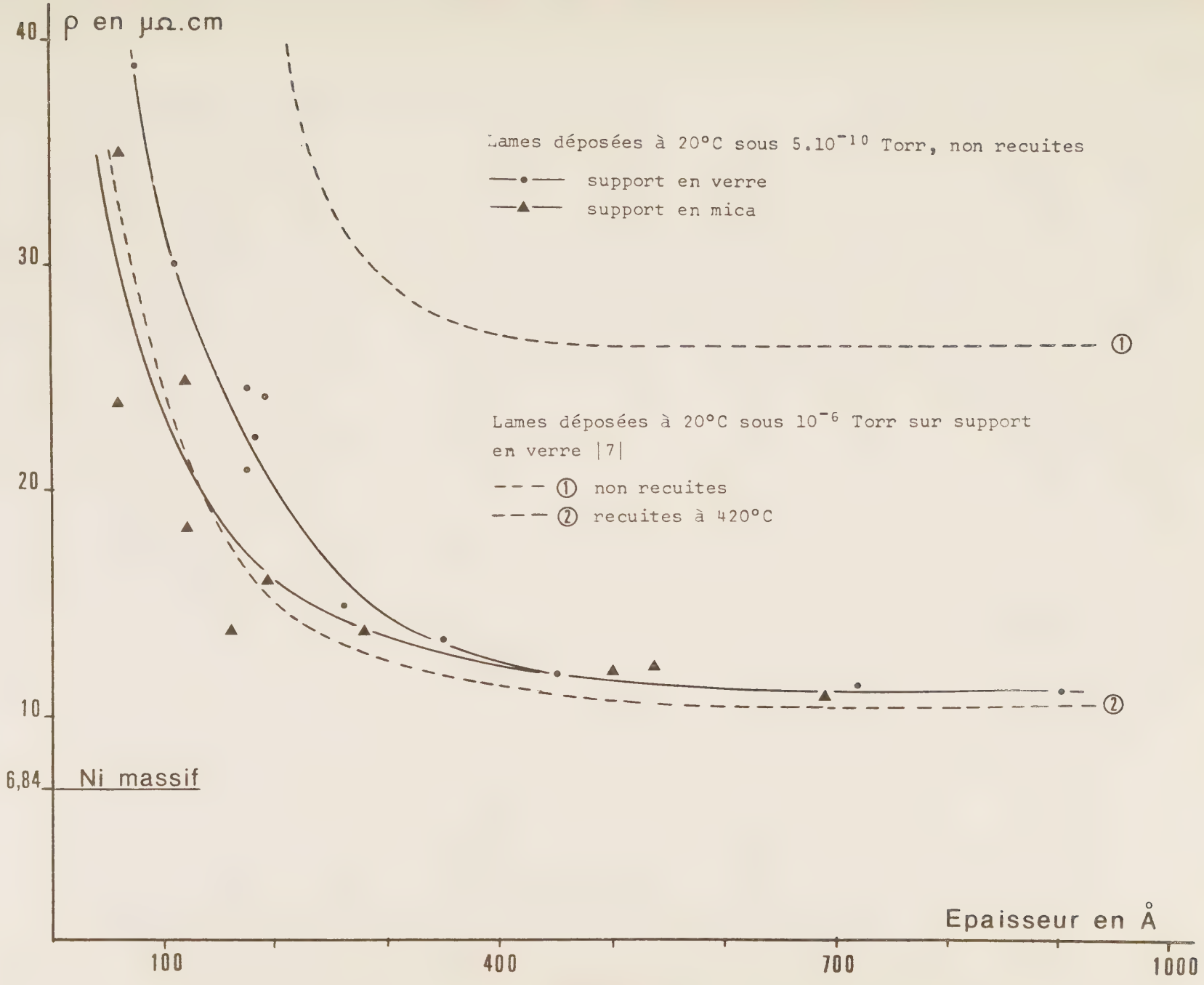

ρ en μΩ.cm
40
30
20
10
6,84
Ni massif
Lames déposées à 20°C sous 5.10⁻¹⁰ Torr, non recuites
support en verre
support en mica
Lames déposées à 20°C sous 10⁻⁶ Torr sur support en verre |7|
① non recuites
② recuites à 420°C
①
②
Epaisseur en Å
100
400
700
1000

FIGURE 2.1

II - LA RESISTIVITE DES FILMS NON RECUITS

La résistivité ρ des lames de nickel déposées sur des supports en verre vycor et en mica non chauffés, est représentée en fonction de l'épaisseur sur la figure 2.1 avec les résultats antérieurement obtenus sous 10^{-6} Torr par Goureaux |7|.

On constate que :

a) Au dessus de 300 Å, la résistivité est indépendante de la nature du support.

b) En dessous de 300 Å, la résistivité des lames sur mica est plus faible, à épaisseur égale, que celle des lames sur verre. C'est un résultat bien connu |5|.

c) Les résultats obtenus sur mica sont plus dispersés que les résultats obtenus sur verre.

d) Les lames obtenues sous ultra-vide ont une résistivité nettement plus faible que les lames préparées sous 10^{-6} Torr et sur support non chauffé. Leur résistivité est du même ordre que celle des lames préparées sous 10^{-6} Torr et recuites à 420°C |7|.

Afin de trouver une explication à la différence entre la résistivité des lames très minces déposées sur mica et celle des lames déposées sur verre, j'ai envisagé l'hypothèse selon laquelle la conduction se fait partiellement à travers le support. Certains auteurs |2| |7| signalent en effet, qu'en appliquant un champ électrique normal au plan de la lame, on observe une variation réversible et reproductible de sa résistance, liée à l'intensité et au sens du champ appliqué. Cette variation peut être importante puisque la résistance de certains films d'or très minces, déposés sur verre, peut atteindre, en présence d'un champ électrique normal au plan du film, trois fois la valeur qu'elle a en l'absence de champ |8|.

Ce phénomène s'explique si l'on admet l'existence de "pièges" à électrons dans la bande d'énergie interdite de l'isolant (support). Ces pièges sont localisés à la surface de l'isolant (états de surface). Si l'on dépose alors un métal sur la surface de l'isolant, il y aura transfert d'électrons du métal vers les pièges à travers la jonction métal-isolant jusqu'à ce que l'équilibre soit établi. Les niveaux de Fermi du métal et de l'isolant sont alors à la même hauteur. Si le dépôt métallique est formé d'îlots isolés les uns des autres (films très minces), il n'y aura formation de jonctions métal-isolant que là où se trouve un îlot. Dans la zone intergranulaire, les pièges resteront vides. En général, la barrière de potentiel qui sépare les pièges est moins élevée que celle qui sépare les îlots |8| et s'il existe des pièges au voisinage du niveau de Fermi, la conduction s'établira par effet tunnel de piège à piège plutôt que par effet tunnel direct d'îlot à îlot. L'importance relative de la conduction par effet tunnel direct par rapport à la conduction par le support (piège à piège), dépend évidemment des distances intergranulaires et du nombre des pièges donc de la nature du support.

En appliquant un champ électrique normal à la surface de séparation métal-isolant on déplace le niveau de Fermi de l'isolant ce qui modifie la conduction.

Pour appliquer un tel champ, on dépose sur la face du support qui ne reçoit pas le dépôt, une électrode métallique qui constitue l'une des plaques d'un condensateur dont l'autre plaque est formée par le film à étudier, le support servant de diélectrique (figure 2.2). Puis, on applique une tension continue aux bornes de ce condensateur.

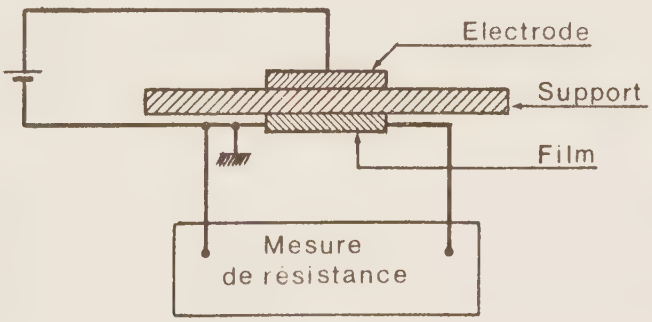


FIGURE 2.2

L'une des extrémités du film est reliée à la masse. En faisant passer un courant dans le film, on peut mesurer simultanément sa résistance.

J'ai ainsi soumis des films très minces (de quelques Å à quelques dizaines d'Å d'épaisseur) à des champs électriques normaux au plan du film, d'intensité comprise entre 0 et 2 500 V/cm. Les variations relatives de résistance observées sont de l'ordre de 10^{-4}, quel que soit le sens du champ appliqué et quel que soit le support, ce qui est parfaitement négligeable.

Il faut donc conclure que dans les films de nickel obtenus sous ultra-vide, les distances intergranulaires sont très petites ou bien que la densité des pièges électroniques du support est extrèmement faible quel que soit le support.

Or, Bonfiglioli et Malvano |2| signalent avoir observé une influence d'un champ électrique normal au support sur la résistance de films métalliques continus déposés sur mica. Ce qui semble en contradiction complète avec mes résultats. Mais, leurs films étaient préparés par évaporation sous 10^{-5} Torr et si l'on remarque que, dans le raisonnement précédent, les pièges électroniques se comportent à peu de chose près comme des impuretés acceptrices dans un semi-conducteur, on peut imaginer une interprétation de leurs résultats qui n'incrimine pas le support. En effet, sous 10^{-5} Torr, le support est toujours recouvert avant le dépôt par une couche de molécules gazeuses qui proviennent de l'atmosphère résiduelle (cf. § 1 de ce chapitre). Les premiers atomes métalliques qui viennent frapper sa surface peuvent former avec les molécules adsorbées, un composé semi-conducteur. On obtient ainsi une mince couche semi-conductrice séparant le film proprement dit du support et les phénomènes observés par Bonfiglioli et Malvano sont dus à cette couche semi-conductrice et non au support. L'explication subsiste dans le cas de films granulaires déposés sous 10^{-6} Torr |8|, les atomes métalliques isolés, déposés dans l'espace intergranulaire, se combinent aux molécules adsorbées pour former un "tapis" semi-conducteur |4||11| plus ou moins continu. La conduction se fait alors soit, par effet tunnel direct de grain à grain soit, à travers le tapis semi-conducteur.

Lorsque le dépôt est fait sous ultra-vide, le tapis semi-conducteur n'existe plus puisque le nombre des molécules gazeuses adsorbées par le support préalablement au dépôt est très faible. Dans ces conditions, un champ électrique normal au support est sans effet sur la résistance du film.

La différence de résistivité entre les lames déposées sur verre et les lames déposées sur mica ne peut donc être attribuée à une différence de conductibilité entre les supports. Il est possible qu'elle soit due à une différence

G = 21 500 × 2

FIGURE 2.3

FIGURE 2.4

G = 21 500 × 2

FIGURE 2.5

FIGURE 2.6

de structure cristalline entre les dépôts sur verre et ceux sur mica. Celui-ci étant un cristal ionique, peut avoir une action d'orientation sur les atomes du dépôt |5|. Mais nous verrons au paragraphe suivant qu'il ne m'a pas été possible de mettre en évidence d'une manière certaine cet effet d'orientation.

Signalons également que, du fait des défauts de clivage qui altèrent la surface des supports en mica, j'ai supposé que l'épaisseur des lames sur mica était la même que celle d'un dépôt effectué simultanément sur un témoin en verre poli optiquement, placé près du support en mica. La différence des résistivités pourrait donc provenir d'une erreur sur l'épaisseur due au fait que la probabilité de fixation du nickel sur le verre n'est pas la même que sur le mica. Cette différence disparait lorsque le support est recouvert d'une couche continue de nickel si bien que lorsque l'épaisseur est assez grande, l'erreur devient négligeable.

Ces défauts superficiels des supports en mica sont très vraisemblablement responsables de la dispersion des valeurs mesurées de la résistivité, plus grande sur mica que sur verre.

III - *STRUCTURE CRISTALLINE DES DEPOTS*

Les figures 2.3 et 2.4 représentent respectivement un cliché obtenu au microscope électronique et un diagramme de diffraction d'électrons relatifs à une couche de nickel de 300 Å d'épaisseur, déposée sour $5\ 10^{-10}$ Torr sur support en verre vycor non chauffé.

Les figures 2.5 et 2.6 sont relatives à une couche de nickel de 175 Å déposée dans les mêmes conditions sur support en mica (muscovite).

La netteté et la finesse des anneaux de la figure 2.4 montrent que les films déposés sur verre ont une structure cristalline isotrope mais qu'ils sont formés de grains très petits. Résultat confirmé par la microphotographie 2.3.

Les anneaux de la figure 2.6 qui comportent des parties renforcées dénotent également une structure cristalline des films déposés sur mica mais avec un début d'orientation préférentielle. Les cristallites sont également très petits mais la figure 2.5 semble indiquer qu'ils sont un peu plus gros que

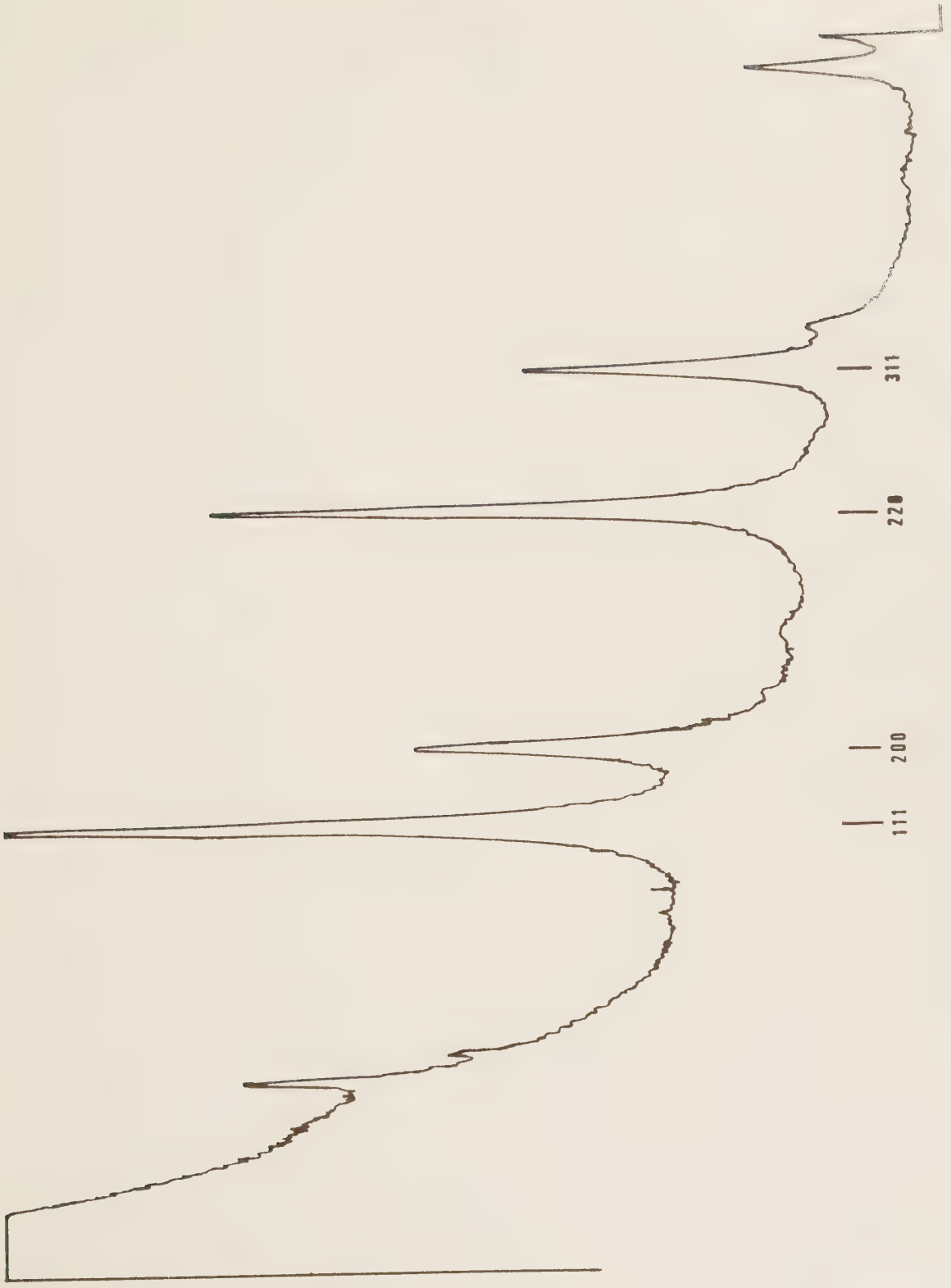


FIGURE 2.7

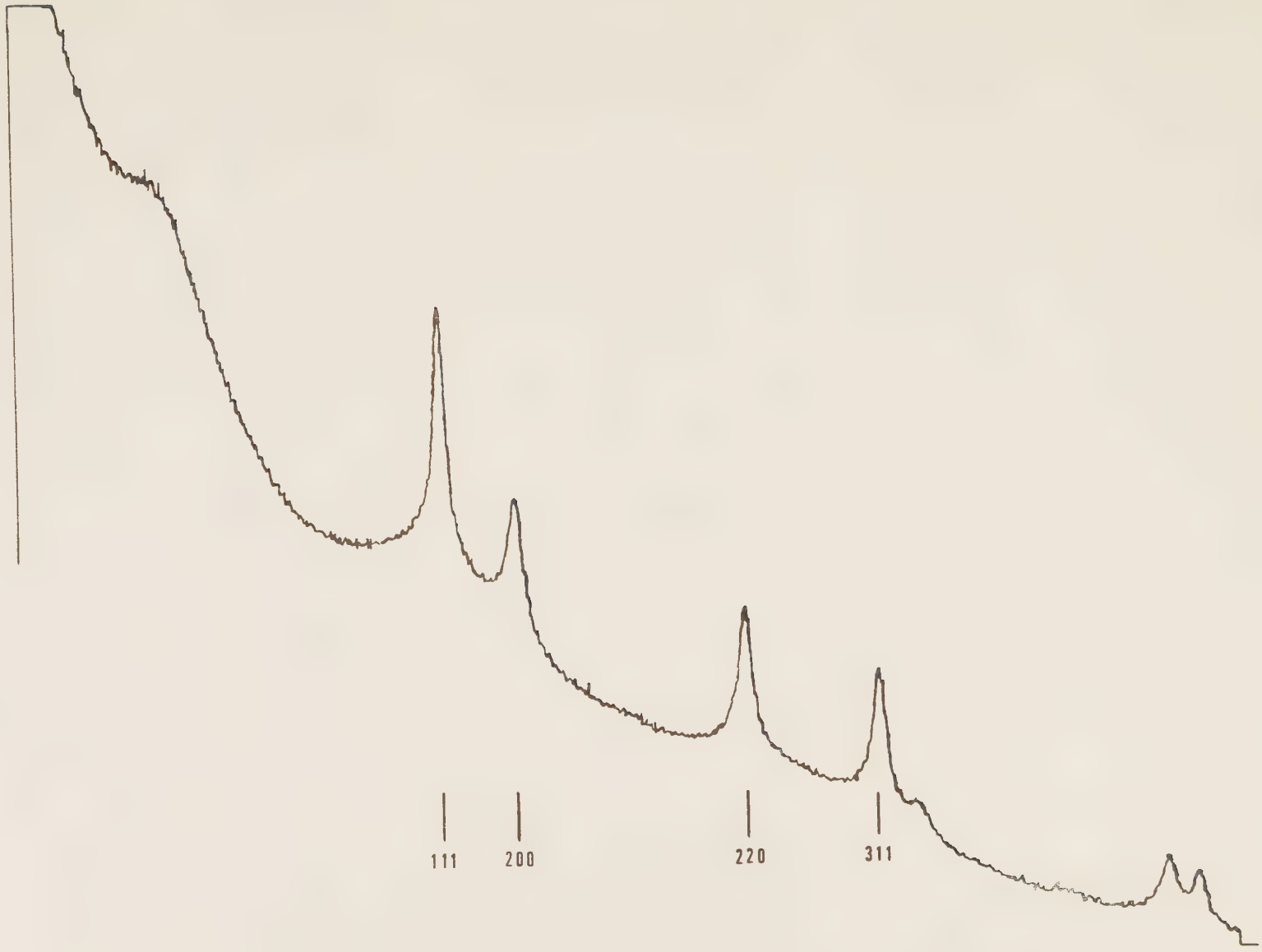


FIGURE 2.8

ceux de la figure 2.3. En fait, l'étude au microdensitomètre de tous les diagrammes de diffraction obtenus qui permet, en mesurant la largeur angulaire des anneaux, de déterminer un ordre de grandeur du diamètre moyen des cristallites |10|, a montré que pour tous les films, déposés sur verre ou sur mica, ce diamètre est compris entre 5 Å et 20 Å. Il semble y avoir une augmentation du diamètre des cristallites avec l'épaisseur du film mais les résultats sont très dispersés et il serait fort hasardeux de conclure.

Les figures 2.7 et 2.8 représentent des résultats obtenus au microdensitomètre à partir des clichés de diffraction. L'un (figure 2.7) a été obtenu à partir du cliché de la figure 2.6, l'autre est relatif à une couche déposée sur verre ayant également 175 Å d'épaisseur. On peut observer en comparant ces deux figures le renforcement des anneaux 111 et 220 du nickel par rapport aux autres lorsque le dépôt a été fait sur mica.

En fait, étant donné qu'il est à peu près impossible de décoller les films de nickel de leur support, les diagrammes de diffraction relatifs aux films déposés sur mica ont été obtenus à partir d'échantillons préparés en amincissant le support par clivage jusqu'à ce que l'ensemble film et support soit devenu transparent aux électrons. Il en résulte que le faisceau d'électrons subit une double diffraction, l'une dans le mica et l'autre dans le nickel. Or, chaque faisceau diffracté une première fois, dans le mica par exemple, peut agir comme un faisceau primaire du point de vue de la diffraction par le nickel. Il n'est pas exclu que ce phénomène intervienne dans le renforcement observé des anneaux du nickel. C'est pourquoi on peut seulement conclure de cette étude que les films de nickel déposés sous ultra-vide, sur support en verre ou en mica non chauffé, sont bien cristallisés.

C'est probablement la raison pour laquelle ils possèdent une résistivité beaucoup plus proche de celle du métal massif |14| que les lames déposées sous 10^{-6} Torr non recuites (figure 2.1). Cette hypothèse est confirmée par le fait, qu'après recuit à 420°C, les lames déposées sous 10^{-6} Torr ont une résistivité comparable à celle des lames que j'ai préparées (figure 2.1) car il est bien connu que le recuit améliore considérablement la structure cristalline des lames déposées sous vide classique |12|.

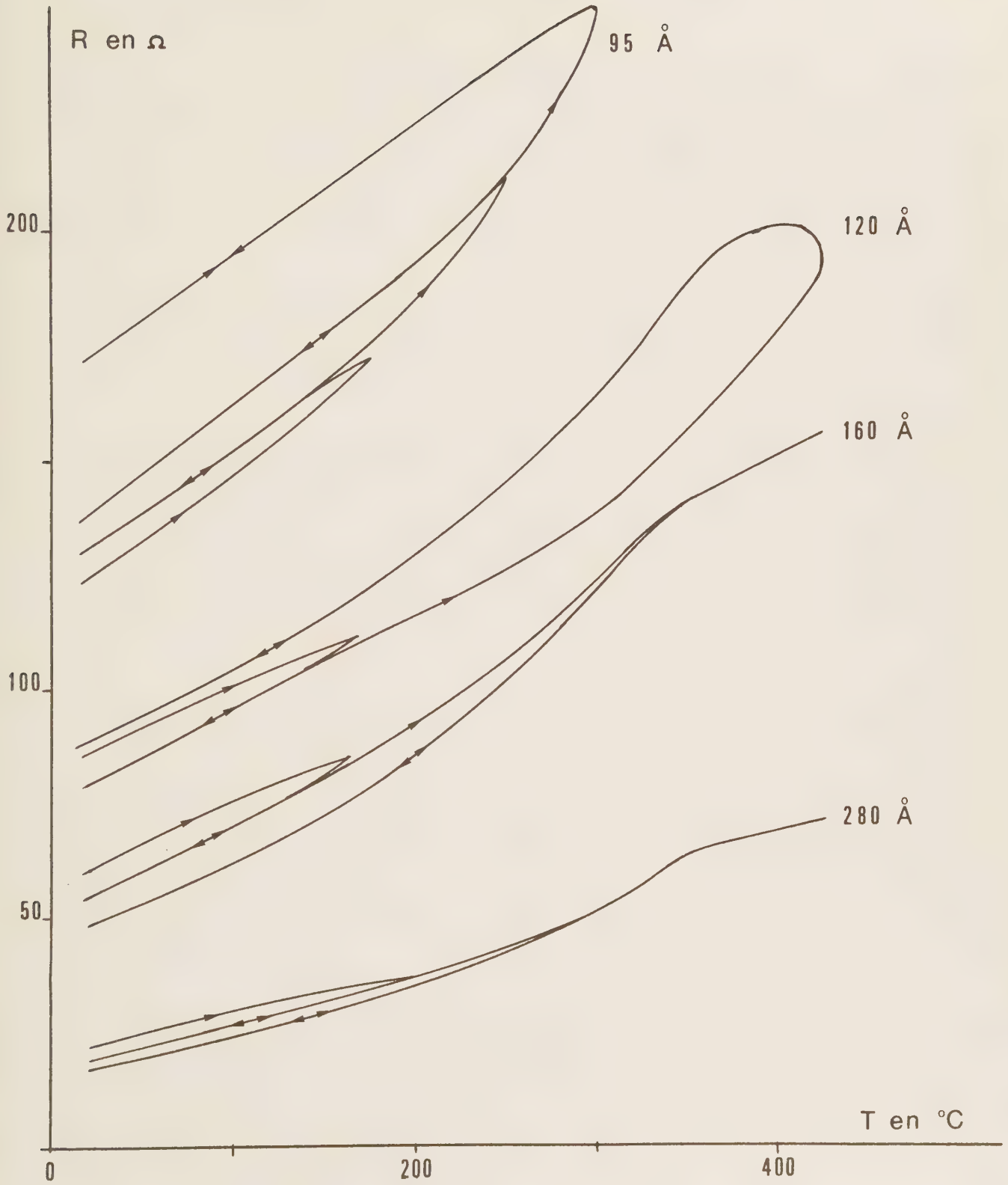


FIGURE 2.9

IV - *INFLUENCE DU RECUIT SUR LES PROPRIETES ELECTRIQUES*

La figure 2.9 représente la résistance en fonction de la température de quelques lames, déposées sur support en verre non chauffé, lors du recuit. On constate que lorsque l'épaisseur est supérieure à 150 Å la résistance diminue faiblement lors du recuit. Pour les épaisseurs inférieures, le recuit provoque au contraire un accroissement de résistance d'autant plus important que la température de recuit est plus élevée et que l'épaisseur du film est plus faible.

Si on limite la température du recuit à 200°C, celui-ci entraine une diminution de résistance tant que l'épaisseur est supérieure à 100 Å. Ajoutons qu'après recuit à 200°C, le coefficient de température de la résistance électrique d'un film est pratiquement le même qu'après recuit à 425°C.

La faible variation de résistance, provoquée par le recuit, des films d'épaisseurs supérieures à 150 Å, confirme les résultats des études au microscope électronique à savoir : que les films de nickel préparés sous ultra-vide ont toujours une structure cristalline, même s'ils sont déposés sur support non chauffé. Le seul effet du recuit est d'accroître la taille des cristaux mais ceux-ci restent cependant très petits. Ce résultat n'a pu être contrôlé au microscope électronique car il s'est avéré impossible de décoller les films recuits de leur support en verre.

Lorsque les films sont très minces, ils sont formés de grains isolés ou reliés entre eux par des "étranglements" et l'augmentation de leur résistance lors du recuit peut s'interpréter par un phénomène de "coagulation". Les grains tendent vers une forme sphérique ce qui entraine la formation d'étranglements plus étroits ou une augmentation des distances intergranulaires. C'est ainsi que des lames très minces (50 Å et au dessous) qui avaient initialement un coefficient de température positif ont, après recuit à une température supérieure à 300°C, un coefficient de température négatif. Ce changement de signe du coefficient de température s'accompagne d'une augmentation considérable de la résistance (rapport 10 et plus).

Des résultats analogues ont été observés pour des films déposés sur mica mais j'ai abandonné les études sur mica parce que la présence de défauts de clivage est très gênante pour des études de résistivité et d'effet Hall qui demandent une connaissance aussi exacte que possible de l'épaisseur des échantillons.

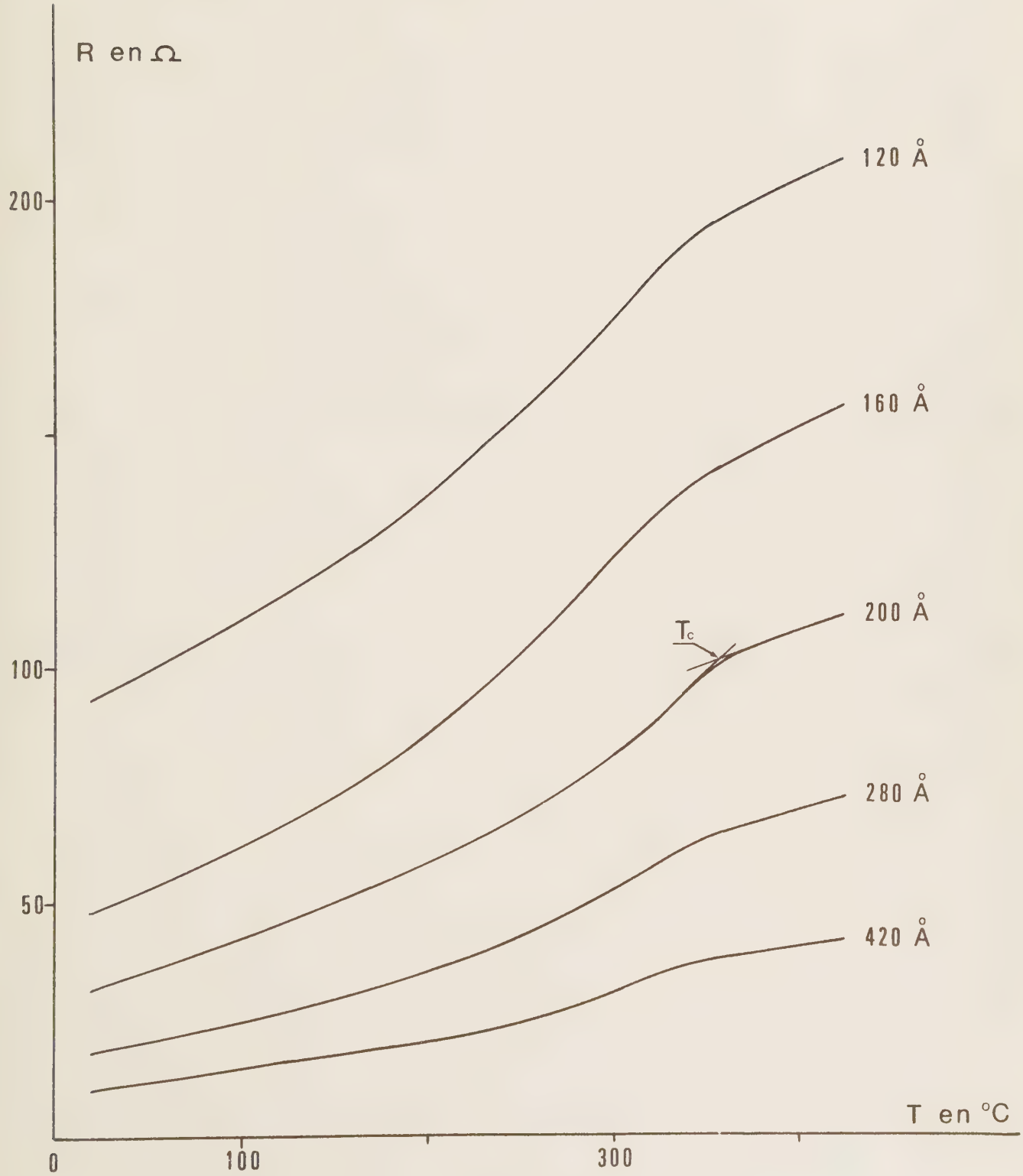


FIGURE 2.10

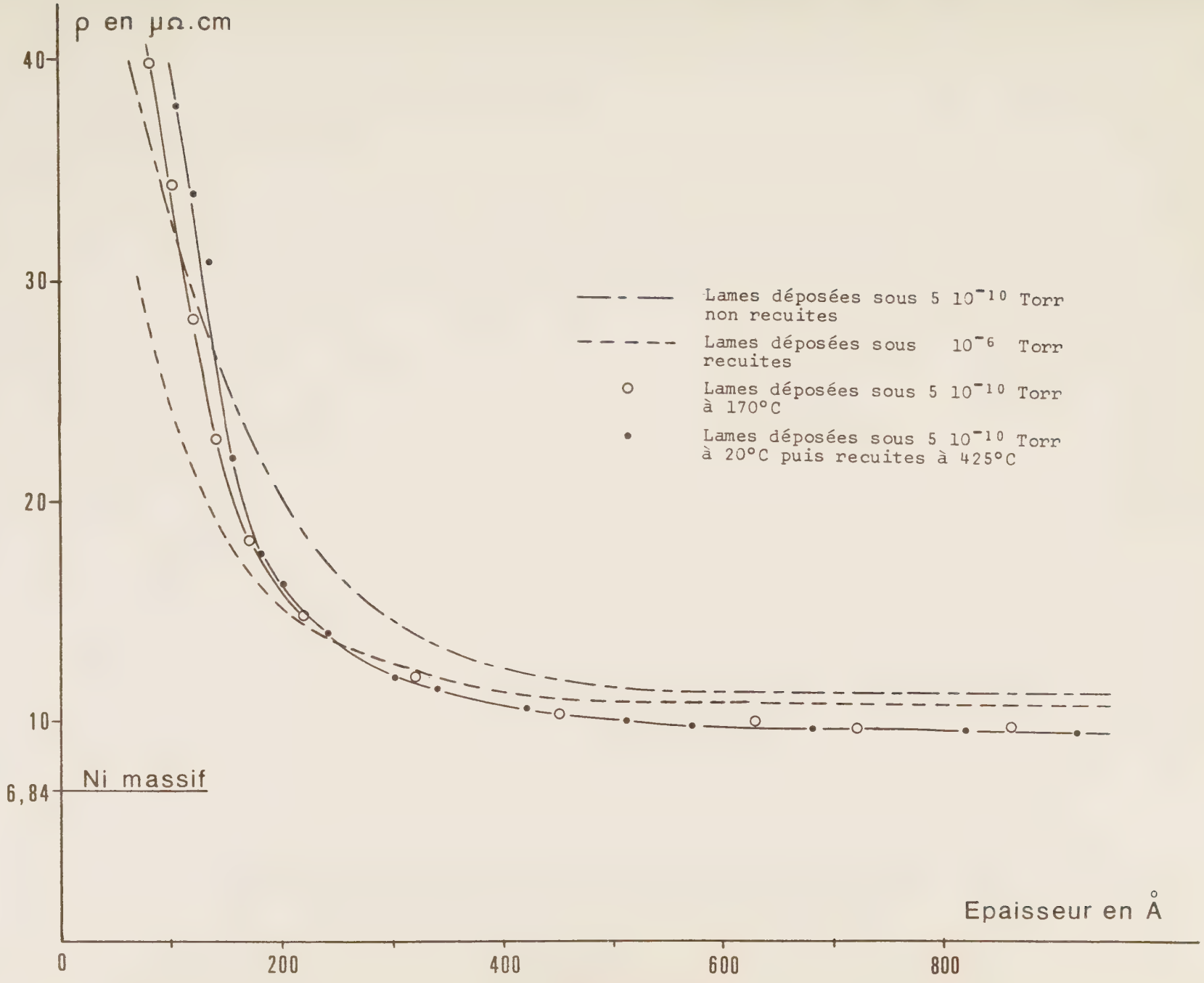

ρ en μΩ.cm
40
30
20
10
6,84
Ni massif
0
200
400
600
800
Epaisseur en Å
Lames déposées sous 5 10⁻¹⁰ Torr non recuites
Lames déposées sous 10⁻⁶ Torr recuites
Lames déposées sous 5 10⁻¹⁰ Torr à 170°C
Lames déposées sous 5 10⁻¹⁰ Torr à 20°C puis recuites à 425°C

FIGURE 2.11

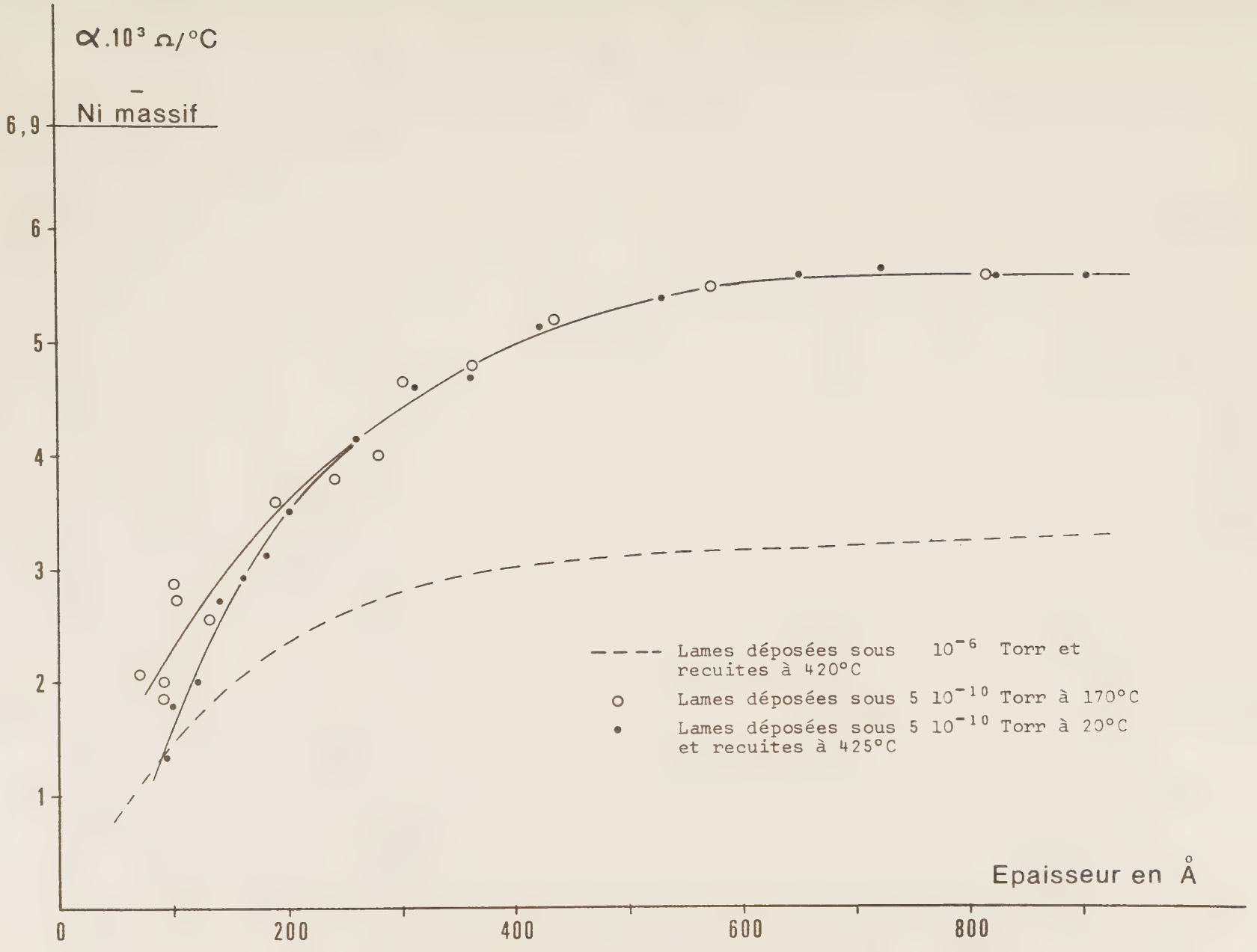

α.10³ Ω/°C
Ni massif
6,9
6
5
4
3
2
1
0
200
400
600
800
Epaisseur en Å
Lames déposées sous 10⁻⁶ Torr et recuites à 420°C
Lames déposées sous 5 10⁻¹⁰ Torr à 170°C
Lames déposées sous 5 10⁻¹⁰ Torr à 20°C et recuites à 425°C

FIGURE 2.12

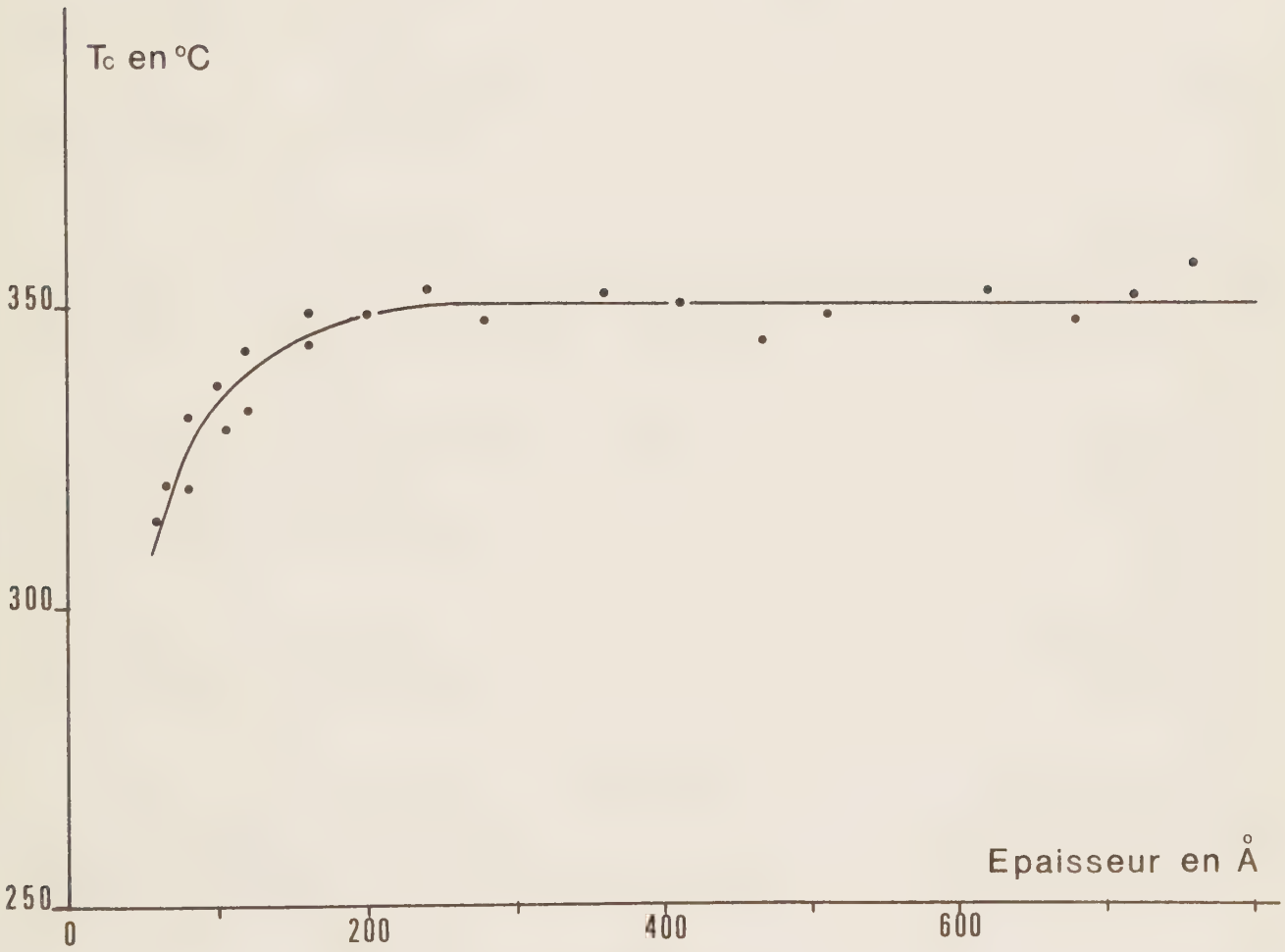


FIGURE 2.13

V - PROPRIETES DES FILMS RECUITS

La figure 2.10 représente la résistance en fonction de la température de quelques films déposés sur verre et d'épaisseurs supérieures à 100 Å, après qu'ils aient été recuits à 425°C. Ces courbes, parfaitement réversibles, ont la même allure que les courbes relatives au nickel massif. On en déduit la résistivité ρ, son coefficient de température $\alpha = \frac{1}{\rho}\frac{d\rho}{dT}$ et la température de Curie T_C.

La résistivité à 20°C est représentée en fonction de l'épaisseur sur la figure 2.11 avec la courbe relative aux mêmes films non recuits et une courbe concernant des films déposés à 10^{-6} Torr et recuits à 420°C |7|.

La figure 2.12 est relative aux variations du coefficient de température α (mesuré entre 0°C et 100°C) avec l'épaisseur pour des films recuits à 425°C. On y trouve aussi une courbe représentant α en fonction de l'épaisseur pour des films déposés à 10^{-6} Torr sur verre et recuits à 420°C |5|.

On a également représenté sur ces deux figures les résultats que j'ai obtenus à partir de films de nickel déposés sur verre à $5\ 10^{-10}$ Torr, le support étant maintenu à 170°C pendant l'évaporation. Les mesures ont été faites après retour à la température ambiante.

On peut observer que les propriétés des films déposés sur supports chauffés à 170°C sont à peu près identiques à celles des films déposés à l'ambiante puis recuits à 425°C si leur épaisseur est supérieure à 120 Å.

L'ensemble de ces résultats confirme nos propos des paragraphes précédents. C'est-à-dire que le recuit améliore la structure des films épais et que les films déposés sous ultra-vide ont une structure plus proche de celle du métal massif |2| que les films déposés sous 10^{-6}Torr.

Pour les films d'épaisseur inférieure à 120 Å, il semble, au contraire, que le recuit ou le dépôt sur support chauffé leur donne une structure d'autant plus discontinue que la température est plus élevée.

La température de Curie T_C des films est représentée en fonction de l'épaisseur sur la figure 2.13. On constate qu'elle est indépendante de l'épaisseur au dessus de 200 Å. La valeur est légèrement inférieure à celle du nickel massif (351°C au lieu de 358°C). Elle diminue avec l'épaisseur au dessous de 200 Å. Nous verrons au chapitre VI que ceci peut s'expliquer par la structure de plus en plus discontinue des films lorsque l'épaisseur diminue.

Chapitre III

Action d'un champ électrique sur la formation des films très minces

De nombreux auteurs ont déjà étudié l'influence d'un champ électrique, appliqué parallèlement au support pendant toute la durée de l'évaporation, sur la structure et les propriétés électriques des films minces |2| |3| |4| |9| |14| |16| |23| |28|. J'ai repris cette étude sur les films de nickel préparés sous ultra-vide afin d'obtenir un moyen d'agir sur la structure de ces films |19|.

I - *DISPOSITIF EXPERIMENTAL*

Les conditions expérimentales sont identiques à celles déjà décrites pour les lames préparées sans champ |18|, mais afin d'avoir un point de comparaison, nous avons déposé simultanément sur le même support deux films, l'un des deux seulement étant soumis pendant toute la durée de l'évaporation à l'action d'un champ électrique.

Le support est constitué par une plaquette en verre vycor, poli optiquement, de 60 mm × 16 mm. Des contacts en nickel sont déposés préalablement suivant la disposition de la figure 3.1. Entre deux des contacts, A et B par exemple, on applique avant le début du dépôt et pendant toute la durée de l'expérience une différence de potentiel définie par une alimentation stabilisée.

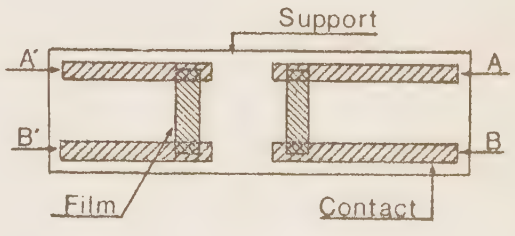


FIGURE 3.1

Afin d'éviter l'apparition d'un courant trop intense qui échauffe-rait la lame par effet Joule, une résistance de protection est placée en série dans le circuit de la lame à étudier, de telle sorte que le champ électrique appliqué n'est rigoureusement défini que pendant le stade initial de formation de la lame, c'est-à-dire tant que celle-ci ne conduit pas. Dès qu'elle devient conductrice, la chute de tension dans la résistance de protection entraine une diminution du champ électrique appliqué.

La valeur de la résistance de protection est choisie de manière à ce qu'en aucun cas le courant qui traverse la lame ne dépasse 1 mA : c'est-à-dire que si la tension appliquée est de 40 V la résistance de protection est de 40 000 ohms, si la tension appliquée est de 20 V la résistance de protection est de 20 000 ohms. Dans ces conditions, les résultats obtenus sont parfaitement reproductibles.

La résistance de la lame évaporée sans champ est mesurée au pont de Wheatstone.

L'influence du champ électrique étant surtout importante pour les lames très minces, d'épaisseur inférieure à 50 Å, nous ne repèrerons pas les lames par leur épaisseur mais par leur résistance superficielle R_o, définie comme étant la résistance d'une lame de même épaisseur que la lame à étudier mais ayant 1 cm de long et 1 cm de large. C'est-à-dire que si ρ désigne la résistivité de la lame et t son épaisseur :

$$R_o = \frac{\rho}{t}$$

Par conséquent R_o est une fonction compliquée de l'épaisseur de la lame et dépend également de sa structure. La bonne reproductibilité, en fonction de l'épaisseur, des résultats obtenus pour les lames plus épaisses nous incite à admettre que deux lames préparées dans les mêmes conditions et de même R_o, ont la même épaisseur ou tout au moins correspondent à la même masse déposée, la notion d'épaisseur n'ayant plus de signification pour les couches très minces de structure discontinue.

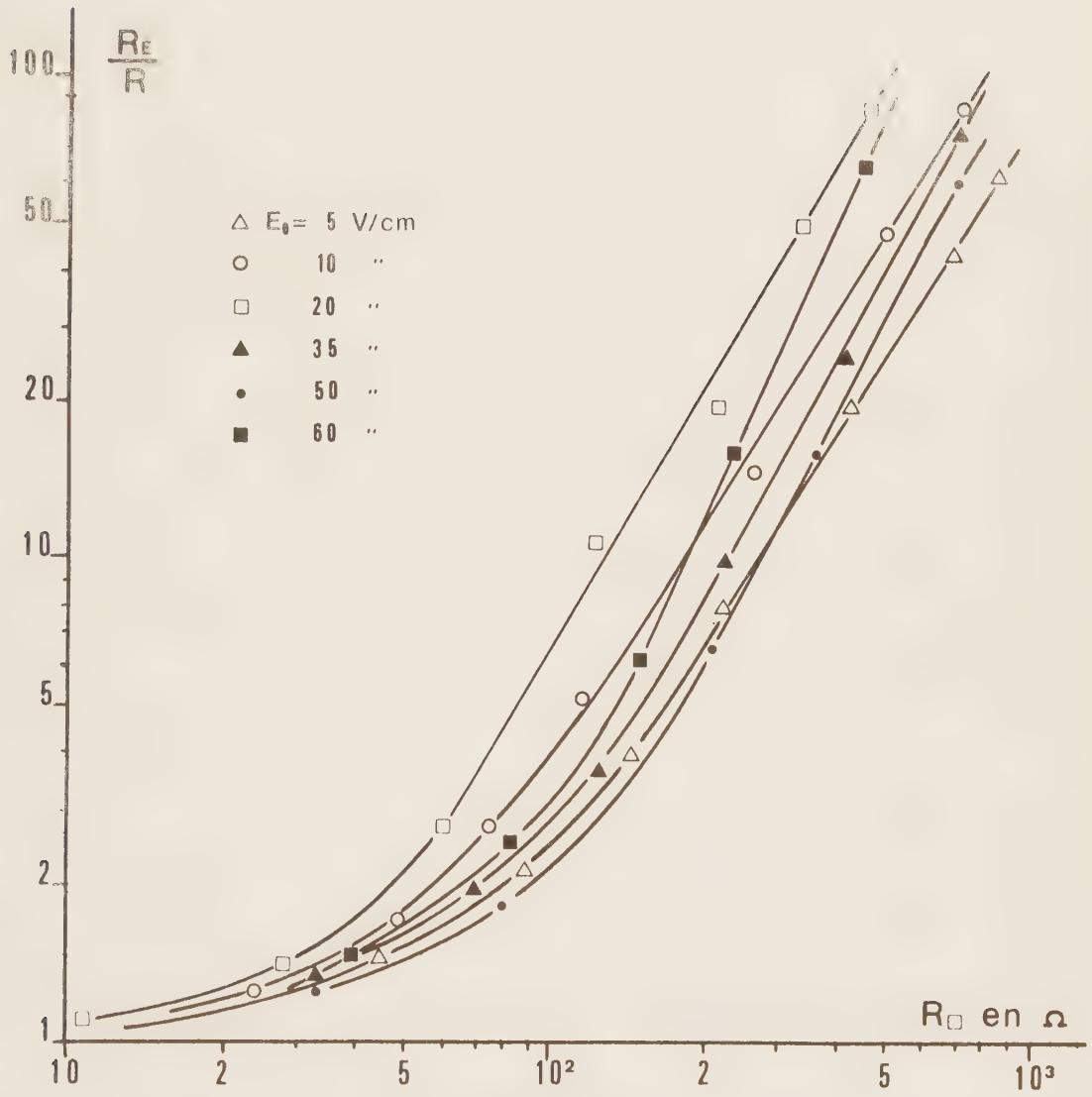

$\frac{R_E}{R}$
100
50
20
10
5
2
1
△ E_0= 5 V/cm
○ 10 "
□ 20 "
▲ 35 "
• 50 "
■ 60 "
$R_\square$ en Ω
10
2
5
10^2
2
5
10^3

FIGURE 3.2

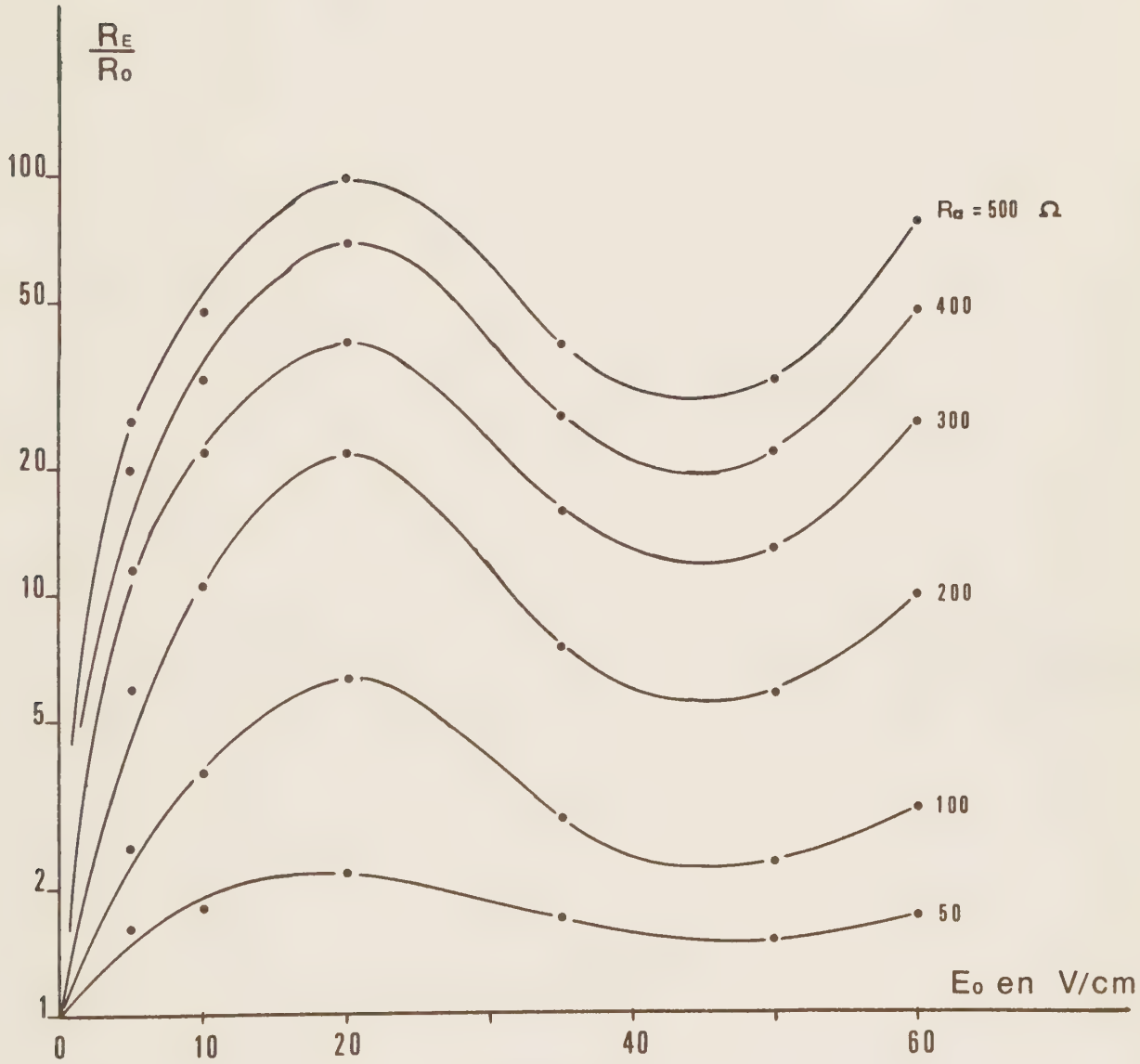

RE / Ro
100
50
20
10
5
2
1
0
10
20
40
60
Eo en V/cm
Ro = 500 Ω
400
300
200
100
50

FIGURE 3.3

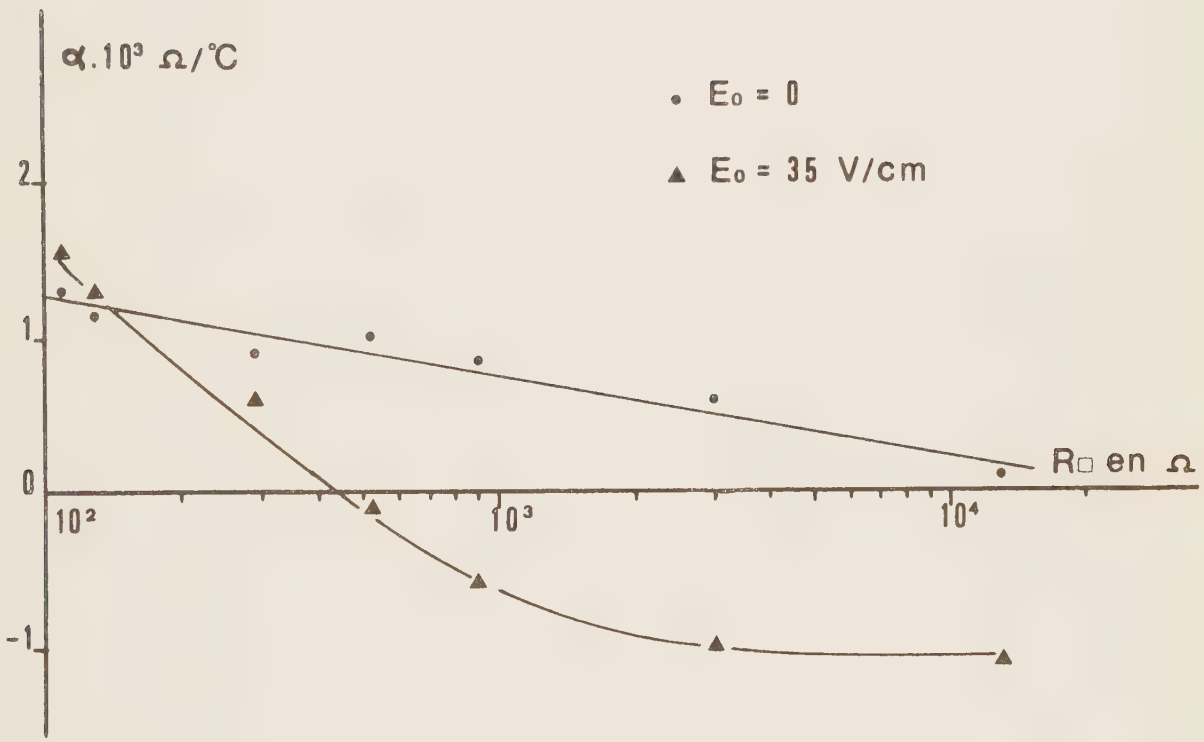


FIGURE 3.4

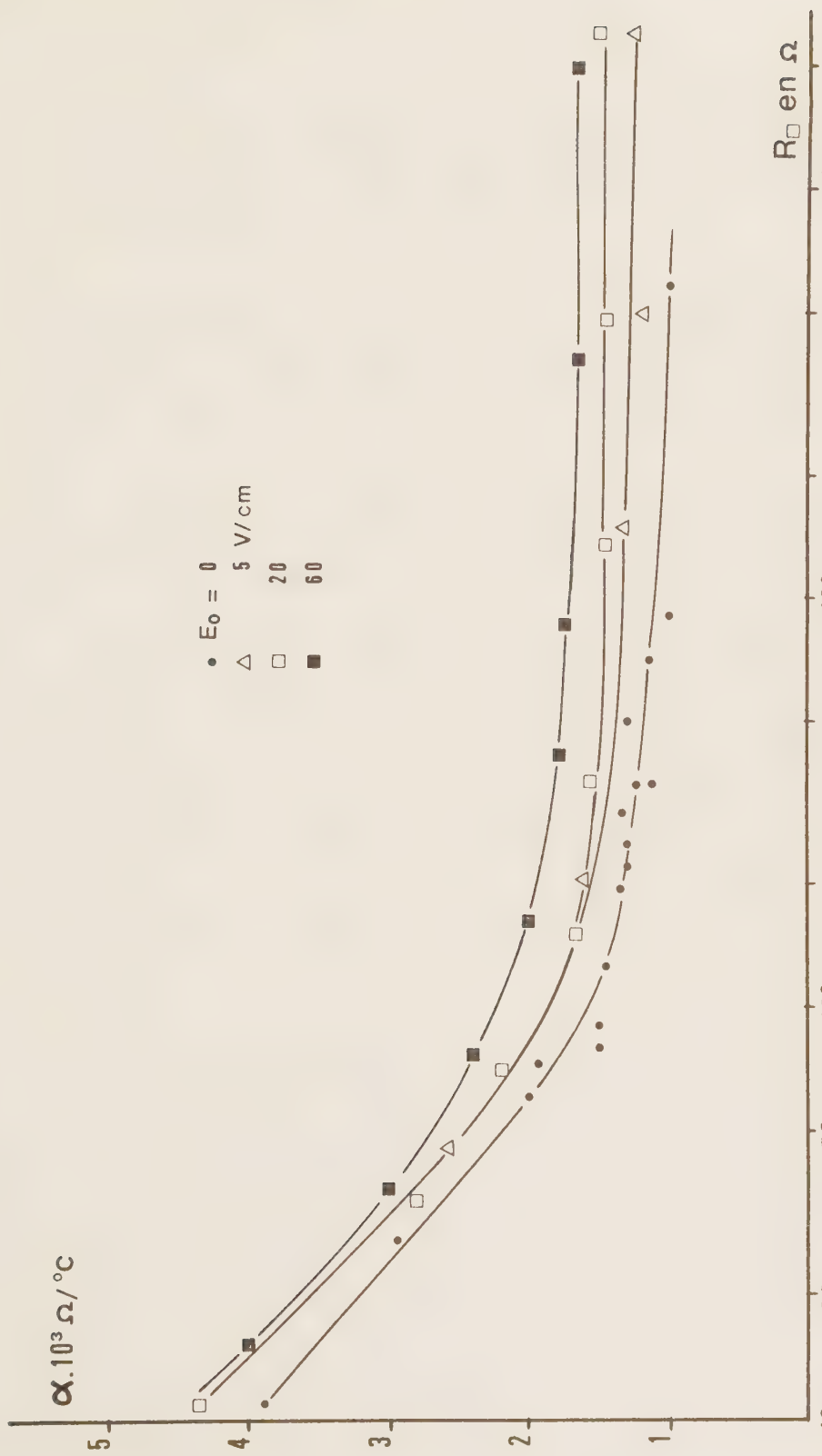


FIGURE 3.5

II - *RESULTATS EXPERIMENTAUX*

J'ai mesuré la résistivité électrique et le coefficient de température de lames d'épaisseurs comprises entre quelques angströms et plusieurs centaines d'angströms et ceci pour divers champs électriques et pour deux températures du support : la température ambiante et 170°C.

Signalons immédiatement que l'effet du champ électrique semble parfaitement négligeable lorsque la lame est déposée à la température ambiante. Les écarts relatifs entre la résistance évaporée en présence d'un champ électrique et celle évaporée simultanément sans champ, n'excèdent pas 7 % même pour des lames très minces.

Les résultats obtenus sur support à 170°C sont au contraire très différents suivant que la lame a été préparée avec ou sans champ électrique. Ils sont représentés sur les figures 3.2 à 3.7.

Le rapport de la résistance R_E de la lame déposée dans un champ électrique à celle, R_o, de la lame déposée simultanément sans champ est représenté en fonction de la résistance superficielle R_0 de la lame déposée sans champ sur la figure 3.2 et en fonction de l'intensité E_o du champ appliqué sur la figure 3.3. On constate que la lame déposée dans un champ possède toujours une résistance plus élevée que l'autre qui correspond cependant à la même masse déposée. Le rapport R_E/R_o qui est fonction de l'intensité du champ appliqué peut atteindre la centaine pour les lames très minces (R_0 grand). Il diminue rapidement lorsque l'épaisseur augmente et devient sensiblement constant et égal à l'unité au dessus de 180 Å ($R_0 < 10\Omega$).

La figure 3.4 est relative aux variations du coefficient de température $\alpha = \frac{1}{R}\frac{dR}{dT}$ de la résistance électrique de deux séries de lames, l'une déposée dans un champ de 35 V/cm, l'autre déposée simultanément sans champ. On peut observer que pour des masses déposées très faibles (R_0 grand), le coefficient de température de la lame déposée dans un champ est négatif alors que celui de la lame déposée sans champ est déjà positif. Or, un coefficient de température négatif implique une structure granulaire pour le film avec une conduction électrique due uniquement à l'effet tunnel entre les grains alors qu'un coefficient de température positif suppose une conduction essentiellement métallique (cf. § III).

Il en résulte que la présence du champ électrique pendant le dépôt entraine un retard à la coalescence des films contrairement à ce qui a été

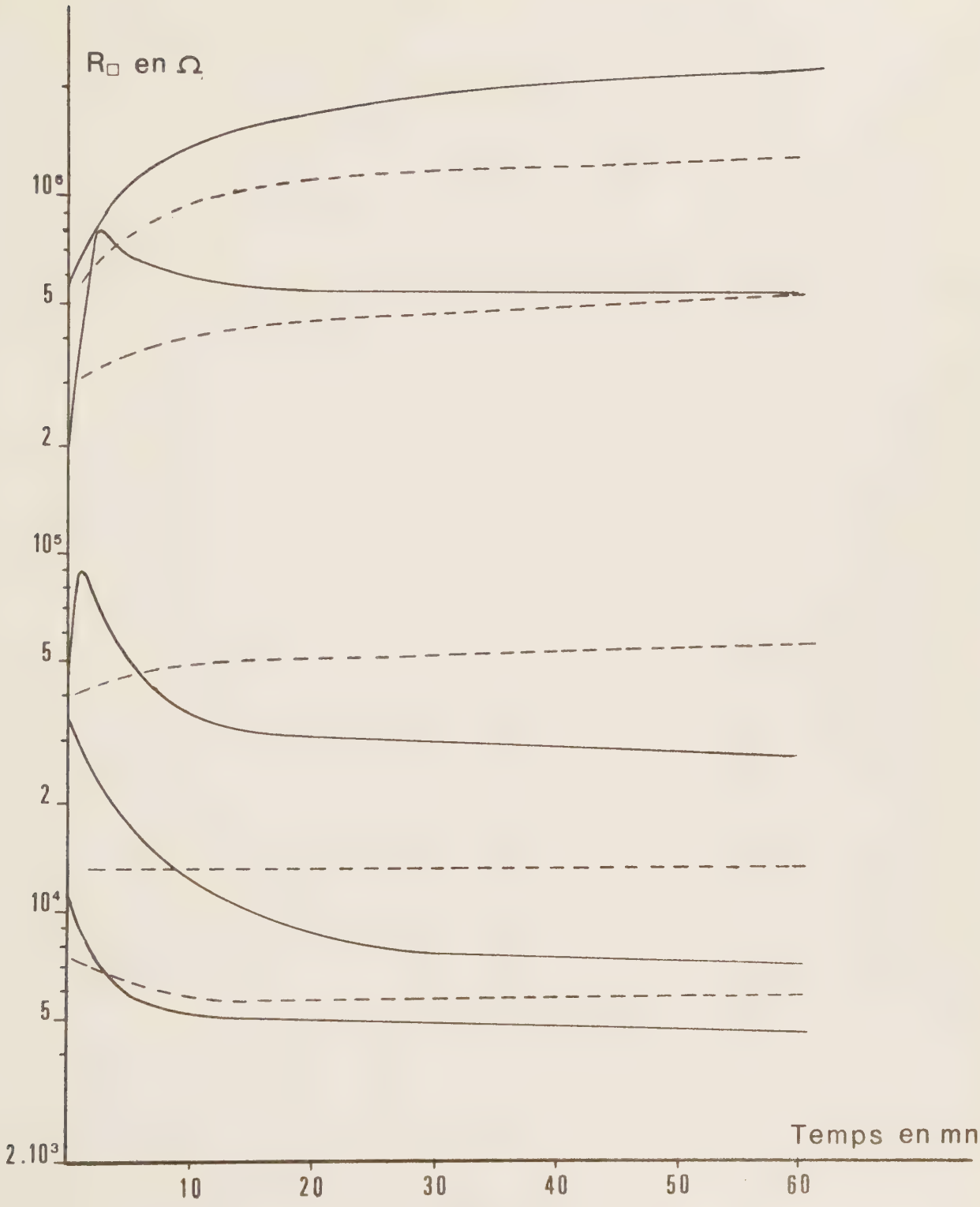


FIGURE 3.6

Trait continu : Lames déposées en présence d'un champ
Trait pointillé : Lames déposées sans champ

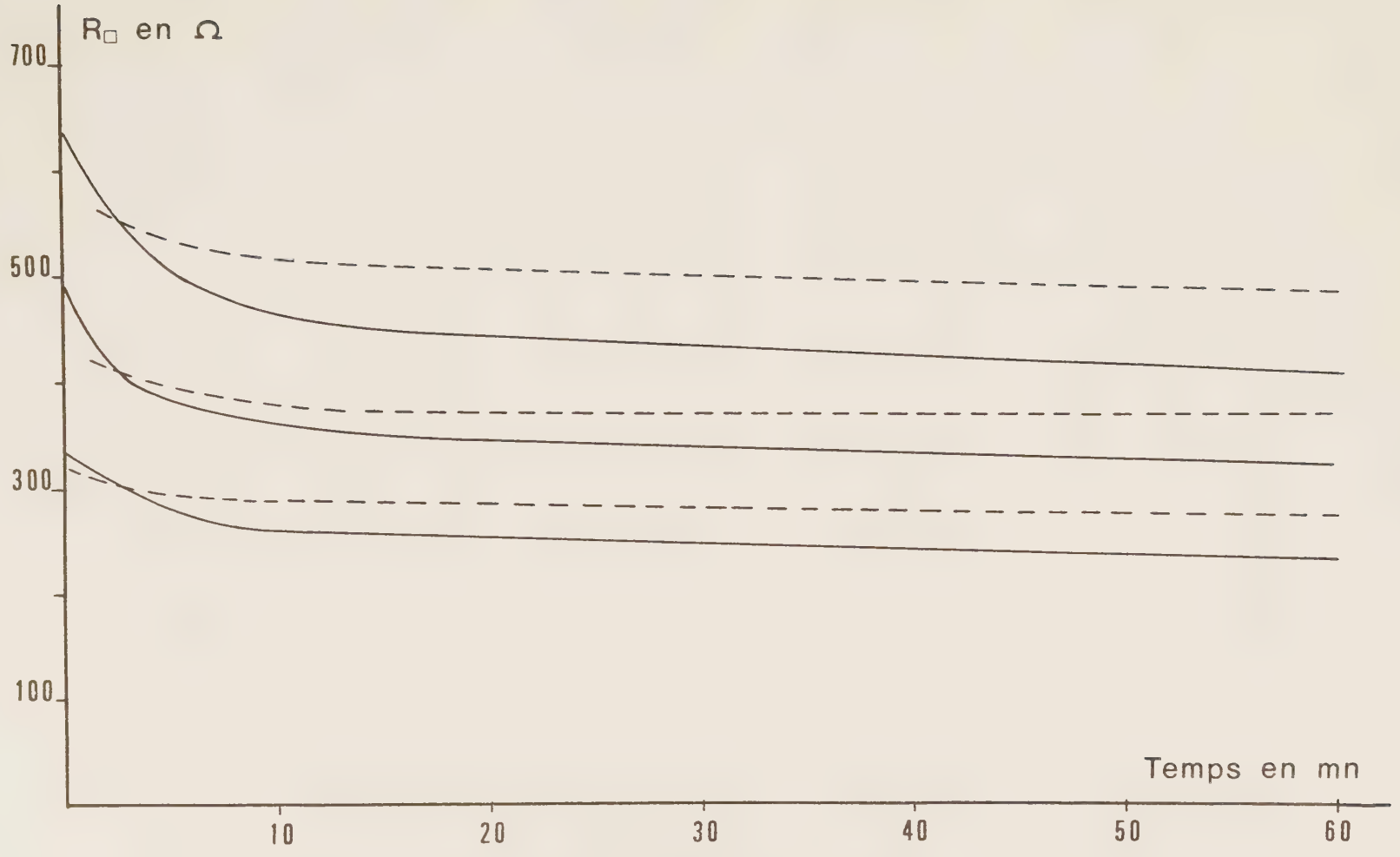


FIGURE 3.7

Trait continu : Lames déposées en présence d'un champ
Trait pointillé : Lames déposées sans champ

observé pour d'autres métaux |2| |16| |14|. Ajoutons que lorsque la masse déposée devient plus importante (R_0 < 150 Ω) les deux films ont un coefficient α positif, celui du film déposé dans un champ étant plus important que celui du film déposé sans champ.

Sur la figure 3.5, j'ai représenté le coefficient α pour différentes valeurs du champ électrique en fonction de la résistance superficielle des films et non, comme sur la figure précédente, en fonction de la résistance superficielle du film déposé simultanément sans champ. Il s'agit de films très minces mais qui possèdent un coefficient de température positif. On peut observer qu'à résistance superficielle égale, le film possède un coefficient de température d'autant plus élevé que le champ appliqué est plus grand.

Remarque Il faut préciser, pour expliquer certaines différences entre les valeurs de α relatives à une même résistance superficielle que l'on peut observer en comparant les figures 3.4 et 3.5, que la figure 3.4 concerne des films déposés avec une vitesse de dépôt de l'ordre de 0,2 Å/s inférieure à la vitesse de dépôt généralement utilisée dans mes expériences (0,5 Å/s). La figure 3.5 concerne des films préparés dans les conditions habituelles.

Les figures 3.6 et 3.7 concernent l'évolution spontanée des lames c'est-à-dire, la variation de la résistance électrique des lames en fonction du temps après la fin du dépôt. On constate que, d'une manière générale, l'évolution spontanée des lames évaporées en présence d'un champ électrique est plus importante et plus rapide, à résistance superficielle égale, que celle des lames évaporées sans champ. Il n'est cependant pas possible de dégager des résultats obtenus une relation faisant intervenir l'intensité du champ électrique.

Le phénomène est évidemment différent selon l'épaisseur de la lame : pour des couches très minces (figure 3.6), à coefficients de température négatifs, la résistance croît au cours du temps alors que pour les couches plus épaisses, à coefficients de température positifs, l'évolution se traduit par une diminution de résistance ; l'évolution devenant peu importante lorsque les lames deviennent continues (figure 3.7).

Afin d'interpréter ces résultats et de tenter d'expliquer l'action du champ électrique, il nous faut d'abord envisager la relation entre la structure des lames et leurs propriétés électriques.

III - RELATION ENTRE LA RESISTANCE ELECTRIQUE DES FILMS ET LEUR STRUCTURE

III.1 - *Couches granulaires*

Envisageons d'abord le cas des lames très minces. Elles sont constituées de grains isolés les uns des autres et la conduction est due au passage des électrons d'un grain à l'autre à travers la barrière de potentiel qui les sépare. Divers mécanismes ont été proposés pour expliquer ce phénomène. Deux seulement doivent être retenus à la température ambiante |20| |26| :

a) Les électrons passent directement par effet Tunnel d'un grain à l'autre |20| |12| ;

b) Les électrons passent d'un grain à l'autre par effet Tunnel à travers le support, les impuretés du support jouent un rôle dans ce mécanisme |13|.

Dans le cas particulier des films de nickel que j'ai obtenus, l'effet tunnel direct semble seul responsable de la conductivité des couches très minces puisque, ainsi que je l'ai déjà signalé, l'action d'un champ électrique normal au support est négligeable. Ce résultat semblerait confirmer, d'après Neugebauer et Webb |20|, que mes films sont composés de grains de petites dimensions séparés par des distances inférieures à 20 Å.

Dans ces conditions, la conductivité σ est donnée par la relation :

$$\sigma = C \exp\left(-\frac{\theta}{kT}\right) \qquad (3.1)$$

dans laquelle k est la constante de Boltzman, T la température absolue et θ une énergie d'activation du processus dont l'origine a fait l'objet de discussions |12| |20| mais qui, de toute manière, est inversement proportionnelle au diamètre $\underline{a}$ des grains constituant la lame.

C est un coefficient caractéristique de l'effet tunnel que l'on peut calculer par la méthode B. K. W. si la distance intergranulaire b est assez grande.

Dans ce cas :

$$C = A \frac{(2\ m\phi)^{1/2}}{\hbar^2\ b}\ \text{Exp}\ \left\{-\frac{4\pi}{\hbar}\ (2\ m\phi)^{1/2}\ b\right\} \qquad (3.2)$$

Expression dans laquelle A est une constante, ϕ est la hauteur de la barrière de potentiel entre les îlots (5 eV pour Ni), m, la masse de l'électron et $\hbar$ la constante de Planck divisée par 2π.

Si C ne change pas avec la température les lames ont un coefficient de température négatif :

$$\alpha = \frac{1}{\rho}\ \frac{d\rho}{dT} = -\frac{1}{\sigma}\ \frac{d\sigma}{dT} = -\frac{\theta}{kT^2} \qquad (3.3)$$

Or, les variations du travail de sortie ϕ en fonction de la température sont négligeables dans le domaine considéré. Par suite, le seul terme qui peut varier est la distance b entre les grains du fait du coefficient de dilatation du support. Dans le cas du support en verre vycor un calcul élémentaire montre qu'on obtient de ce fait une variation relative de résistance $\frac{\Delta R}{R}$ de l'ordre de $10^{-5}/°C$ qui est 10 à 100 fois plus faible que le coefficient de température mesuré.

Il est cependant possible d'obtenir un coefficient de température positif quand les îlots constituant le film ont de grandes dimensions et que seules quelques discontinuités sont importantes. En effet, dans ce cas, on écrit en première approximation que la résistivité ρ est la somme d'un terme ρ_g dû au grain et d'un terme ρ_d résultant du transfert à travers les discontinuités.

$$\rho = \rho_g + \rho_d$$

le grain étant d'assez grandes dimensions a un comportement métallique et :

$$\rho_g = \rho_o\ (1 + \alpha_g\ T)$$

d'où le coefficient de température :

$$\alpha = \frac{1}{\rho}\ \frac{d\rho}{dT} = \frac{\alpha_g\ \rho_o - \frac{1}{C}\ \frac{\theta}{kT^2}\ \exp\ (+\frac{\theta}{kT})}{\rho_o + \frac{1}{C}\ \exp\ (+\frac{\theta}{kT})}$$

Le grain ayant de grandes dimensions θ est petit et par suite :

$$\alpha \simeq \frac{\alpha_g \cdot \rho_o}{\rho_o + \frac{1}{C}} \qquad (3.4)$$

Ainsi, il apparait que les propriétés électriques de ces lames sont définies essentiellement par la taille des grains et par la distance intergranulaire.

L'action d'un champ électrique appliqué pendant l'évaporation, se traduisant par une augmentation de la résistance de la lame ne peut s'expliquer que si elle produit un accroissement de la distance intergranulaire.

En effet, le terme prépondérant dans l'expression de la résistivité reste toujours le terme dû à l'effet tunnel entre les grains. Or, dans la formule (3.1), le terme exponentiel reste toujours petit tandis que le coefficient C dépend fortement de la distance intergranulaire b et la formule (3.2) montre qu'il diminue si b croît donc que la résistivité $\rho = \frac{1}{\sigma}$ augmente.

D'autre part, si les distances intergranulaires du film déposé en présence du champ sont importantes, son coefficient de température sera donné par la formule (3.3), c'est-à-dire qu'il sera négatif. Tandis que les distances intergranulaires du film déposé simultanément sans champ étant faibles, son coefficient de température sera donné par (3.4) ; il sera positif. Autrement dit, l'augmentation de la distance intergranulaire sous l'action du champ électrique explique parfaitement les résultats de la figure 3.4.

III.2 - *Films lacunaires*

Lorsque les dimensions des îlots qui constituent le film continuent à croître du fait de la prolongation du dépôt, on atteint le stade de la coalescence. Les lames sont alors formées de grains d'assez grandes dimensions, reliés l'un à l'autre par des étranglements. Elles présentent tous les caractères de la conductivité métallique mais leur structure présente de nombreuses lacunes et leur résistivité électrique très élevée est due essentiellement aux faibles diamètres des étranglements reliant les grains entre eux.

Afin d'interpréter qualitativement les propriétés de ces lames, nous allons adopter une représentation très schématique de leur structure. Nous représenterons chaque grain par un cylindre de diamètre d_1 et de longueur l_1, chaque grain étant relié au voisin par un cylindre de diamètre d_2 et de longueur l_2 ainsi que cela apparait sur la figure 3.8.

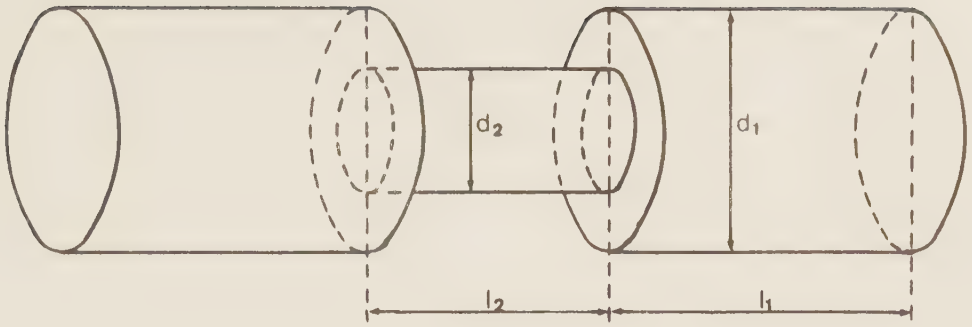


FIGURE 3.8

La lame est constituée par un arrangement régulier de systèmes de ce type, c'est-à-dire que nous admettrons que tous les grains ont les mêmes dimensions et que toutes les zones intergranulaires sont identiques, de telle sorte que le comportement de la lame dans son ensemble soit qualitativement semblable à celui d'un seul système.

Dans cette représentation, chaque grain est assimilé à un fil cylindrique mince dont la résistivité ρ est en première approximation, reliée au diamètre d et au libre parcours moyen des électrons λ par la relation de Nordheim |21|.

$$\rho = \rho_\infty \left(1 + \varpi \frac{\lambda}{d}\right)$$

dans laquelle ρ_∞ désigne la résistivité du métal massif et ϖ un coefficient lié au type de la diffusion des électrons à la surface ; $\varpi = 1$ si la réflexion est diffuse, $\varpi = 0$, si elle est élastique.

Cette relation n'est évidemment qu'approchée mais elle conduit à des résultats qui diffèrent de ceux prévus par la théorie plus exacte de Dingle |6| de moins de 5 % seulement si $\varpi = 1$.

Si nous supposons $\varpi = 1$ et si nous posons $s = \frac{\lambda}{d}$ nous pouvons réexprimer la formule de Nordheim sous la forme :

$$\rho = \rho_\infty (1 + s) \qquad (3.5)$$

Le coefficient de température α du film est alors relié au coefficient du métal massif α_∞ par la relation :

$$\alpha = \frac{\alpha_\infty}{1 + s} \tag{3.6}$$

Il en résulte que :

$$\alpha\rho = \alpha_\infty \rho_\infty$$

Le produit $\alpha\rho$ est indépendant du diamètre du fil même s'il est très mince.

Envisageons alors ce qui se passe pour un système composé de deux fils de diamètres différents et de longueurs différentes disposés en série. On désigne par A_1 la section du fil de longueur l_1 et par A_2 celle du fil de longueur l_2.

Nous nous intéressons à la résistance R du système :

$$R = R_1 + R_2 = \rho_\infty \left[\frac{l_1}{A_1}(1 + s_1) + \frac{l_2}{A_2}(1 + s_2)\right] \tag{3.7}$$

et au produit :

$$\alpha R = \frac{dR}{dT} = \frac{dR_1}{dT} + \frac{dR_2}{dT} = \alpha_1 R_1 + \alpha_2 R_2$$

$$= \alpha_\infty \rho_\infty \left(\frac{l_1}{A_1} + \frac{l_2}{A_2}\right) \tag{3.8}$$

qui ne dépend que des dimensions des deux fils.

Notons qu'avec nos notations les inégalités suivantes sont toujours vérifiées :

$$\begin{aligned} R_1 &< R_2 \\ \alpha_1 &> \alpha_2 \end{aligned} \tag{3.9}$$

Nous allons montrer que dans ces conditions, les résultats représentés sur la figure 3.5 s'expliquent si l'on admet que les dimensions l_1 et A_1 des grains du film augmentent lorsque l'intensité du champ électrique appliqué pendant le dépôt croît.

Si A_1 et l_1 augmentent, la longueur totale du film restant constante, il en résulte une diminution de l_2 et vraisemblablement une augmentation de A_2 par suite du processus de coalescence. Alors s_1 et s_2 diminuent et :

$$R_2 = \rho_\infty \frac{l_2}{A_2} \quad (1 + s_2)$$

diminue, donc $dR_2 < 0$.

D'autre part, il résulte de la formule (3.6) que $d\alpha_1$ et $d\alpha_2$ sont positifs.

Or, par hypothèse, nous considérons des lames de même résistance donc :

$$dR = dR_1 + dR_2 = 0$$

par suite :

$$d(\alpha R) = \alpha_1 dR_1 + \alpha_2 dR_2 + R_1 d\alpha_1 + R_2 d\alpha_2$$

$$= (\alpha_1 - \alpha_2) dR_1 + R_1 d\alpha_1 + R_2 d\alpha_2$$

est nécessairement positif, ce qui nous conduit à la conclusion annoncée.

III.3 - *Lames continues*

Lorsque les lames deviennent continues elles possèdent encore une résistivité plus élevée que le métal massif du fait de la diffusion des électrons par les surfaces du film et aussi parce qu'elles comportent un nombre de défauts par unité de volume beaucoup plus important que les échantillons massifs. Les joints de grains sont justement des défauts qui peuvent influencer la résistivité. On devrait donc s'attendre à ce que les lames évaporées en présence d'un champ électrique, constituées initialement de grains plus gros, présentent lorsqu'elles sont suffisamment épaisses une résistivité plus faible que les lames évaporées sans champ. Or, on ne constate pas expérimentalement, pour des lames de 500 Å ou plus d'épaisseur, de différence notable. Cela peut être dû au fait que les cristallites qui constituent nos films sont de toute façon très petits et aussi au fait que l'intensité du champ électrique appliqué diminue très rapidement dès que le film devient conducteur ainsi que nous l'avons expliqué au paragraphe I de ce chapitre.

III.4 - *Conclusion*

En résumé, il apparait que l'action d'un champ électrique appliqué parallèlement au support pendant le dépôt d'un film par évaporation thermique sous ultra-vide se traduit par un accroissement de la taille des grains qui forment ce film. Il nous reste à envisager comment interpréter cette action du champ électrique, c'est-à-dire à rechercher comment la présence du champ électrique modifie les conditions de formation du film.

IV - *LA FORMATION DES FILMS*

L'examen en microscopie électronique par transmission ainsi que par la méthode des répliques, des lames minces à différents stades de leur formation a montré que l'on pouvait diviser ce processus en cinq étapes:

1°) Au stade initial, le stade de nucléation, il y a formation de grains à trois dimensions, de petites tailles, isolés les uns des autres, appelés nucléï.

2°) On observe ensuite la croissance des dimensions de ces nucleï sans augmentation de leur nombre. C'est-à-dire que leurs dimensions augmentent d'une part parce que de nouveaux atomes évaporés se déposent directement sur chaque nucléon, d'autre part, parce que ceux qui se déposent en des points voisins, là où il n'y a pas de dépôt, migrent à la surface du support pour s'amalgamer à l'un des nucléï existant. C'est cette diffusion superficielle à l'échelle atomique qui est responsable essentiellement de l'accroissement des dimensions des nucléï.

3°) Dans l'étape suivante, on constate un accroissement beaucoup plus important des dimensions de ces nucléï accompagné par une diminution graduelle mais considérable de leur nombre. Ceci semble dû essentiellement au fait que certains nucléï atteignent des dimensions suffisantes pour entrer en contact avec les nucléï voisins et en quelque sorte les absorber.

4°) Durant tout ce processus les lames sont toujours formées d'îlots isolés les uns des autres. Les lames sont dites granulaires. Au stade suivant, les îlots ont atteint une taille telle qu'ils arrivent au contact. On dit qu'il y a coalescence des grains. Les films sont alors constitués par un réseau d'îlots reliés entre eux par des étranglements, c'est-à-dire des zones plus étroites constituées cependant par le matériau déposé. Le film présente une structure avec des trous et des canaux. On dira qu'il s'agit des films lacunaires.

5°) Finalement, lorsque le dépôt se prolonge, il se forme un film continu sans lacunes.

Les divers stades de la formation se retrouvent quelle que soit la nature du dépôt et celle du substrat, cependant la taille et le nombre des nucléï initiaux varient beaucoup suivant les conditions expérimentales réunies lors de la préparation. Mais il semble, en première approximation, que les facteurs qui influencent les formes d'équilibre des nucléï initiaux influencent aussi les formes des îlots plus grands constitués à un stade ultérieur.

Si l'on suppose que les nucléï ont des formes d'équilibre ou presque, on peut supposer qu'étant donné leurs petites dimensions, les facteurs les plus importants sont les énergies superficielles, c'est-à-dire les énergies de surface du support et du dépôt et l'énergie de l'interface dépôt-support.

A partir de ces hypothèses on a bâti une théorie thermodynamique, basée sur les travaux de Gibbs |11| et de Volmer |27| relatifs à la formation d'une nouvelle phase à l'intérieur d'une phase fluide, qui permet d'interpréter au moins qualitativement les phénomènes observés lors de la condensation d'une vapeur sur un support.

Nous allons la résumer afin d'envisager ensuite comment la présence d'un champ électrique peut modifier le phénomène. Nous rappellerons d'abord brièvement les travaux de Gibbs et de Volmer et nous verrons ensuite rapidement quelles sont les principales modifications qu'on leur a apportées pour tenter de résoudre le problème de la nucléation des films.

Nous envisageons donc d'abord la formation de gouttelettes liquides à l'intérieur d'une vapeur sursaturée. Nous désignerons par phase prime

la phase vapeur et par phase seconde la phase condensée. Si F désigne l'énergie libre du système, n' le nombre de moles dans la phase vapeur, n'' le nombre de moles dans la phase condensée et si on désigne par :

$$\mu = \frac{\partial F}{\partial n} \tag{3.10}$$

le potentiel chimique d'une phase comportant n moles, on appelle <u>affinité de condensation</u> de la phase prime à la température T et à la pression p sur une grande masse de la phase seconde prise dans les mêmes conditions de température et de pression, la quantité :

$$A = \mu' (T, p) - \mu''_{\infty} (T, p) \tag{3.11}$$

L'indice ∞ indique qu'il s'agit d'une grandeur relative à un échantillon de grandes dimensions.

Dans le cas de la condensation sur une gouttelette de rayon r on définit l'affinité de condensation par la relation :

$$A_r = \mu' (T', p') - \mu'' (T'', p'') \tag{3.12}$$

où la pression p'' de la phase seconde est liée à la pression de la phase vapeur p' par la relation de Laplace :

$$p'' - p' = \frac{2\gamma}{r} \tag{3.13}$$

qui traduit les conditions d'équilibre mécanique d'une goutte liquide. γ est la tension superficielle de l'interface solide-liquide et r le rayon de courbure de la surface de la gouttelette, au point considéré (figure 3.8). On montre alors que :

$$A_r = A - \frac{2\gamma}{r} V'' \tag{3.14}$$

où V'' est le volume molaire de la phase seconde.

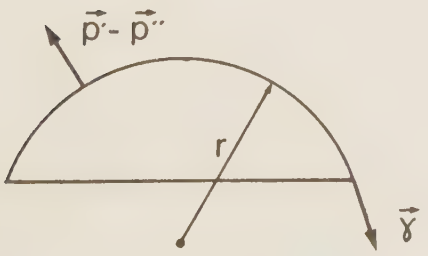


FIGURE 3.9

On voit que l'affinité de condensation sur une gouttelette de rayon r peut être sensiblement moins grande que sur une phase en grande masse. Elle peut même devenir négative et la gouttelette qui aurait un rayon assez petit se vaporiserait dans la vapeur sursaturée.

On appelle germe de condensation, la gouttelette dont le rayon $r^{\times}$ est tel qu'elle soit en équilibre avec la vapeur : $A_r = 0$.

$$r^{\times} = \frac{2\gamma\, V''}{A} \tag{3.15}$$

On définit de façon analogue les germes de cristallisation. On montre que si $p_e\,(T)$ est la tension de vapeur de la phase condensée en grande masse à la température T et si l'on assimile la vapeur à un gaz parfait :

$$A = R\,T \log_e \frac{p'}{p_e\,(T)} \tag{3.16}$$

d'où :

$$r^{\times} = \frac{2\gamma\, V''}{R\,T\,\mathrm{Log}_e \dfrac{p'}{p_e\,(T)}} \tag{3.17}$$

R est la constante des gaz parfaits.

L'énergie libre de formation d'un germe s'écrit alors :

$$(\Delta F)_{T,\,V} = -\int_0^{n''} A_r\, d\, n''$$

d'où pour une goutte sphérique :

$$(\Delta F)_{T,\,V} = \frac{1}{3}\,\gamma\,\Omega'' \tag{3.18}$$

Ω'' étant l'aire de la sphère.

Cette expression peut s'écrire sous la forme :

$$(\Delta F)_{T,\,V} = \frac{16\gamma^3}{3A^2}\,V''^2 \tag{3.19}$$

Dans le cas d'un germe cristallin limité par des surfaces planes $\Omega_1, \ldots, \Omega_\beta$, on désigne par γ_β la tension superficielle de la face Ω_β et on obtient, en admettant les relations de Wulff [29]

$$\Delta F_{T,\,V} = \frac{1}{3} \sum_\beta \gamma_\beta\, \Omega_\beta \tag{3.20}$$

Ces relations sont encore valables à l'interface fluide-solide |5| et on aboutit à la relation (figure 3.9) :

$$\Delta F_{TV} = \frac{\gamma_{13}}{3} (\Omega_{13} - \Omega_{23} \cos \phi) \qquad (3.21)$$

Cette relation permet de montrer que l'énergie libre de formation d'un germe lenticulaire à l'interface fluide-solide est inférieure à celle d'un germe sphérique |5|.

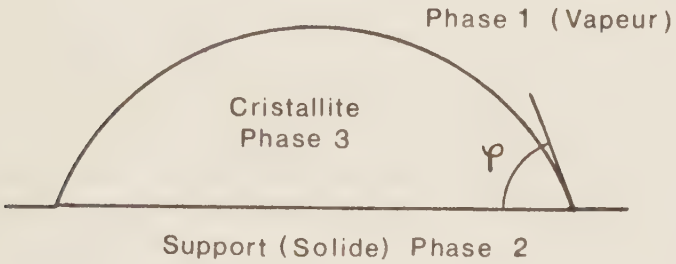


FIGURE 3.10

On admet généralement que ces résultats sont encore valables, au moins qualitativement, lors de la condensation d'une vapeur métallique sur un substrat.

En faisant l'hypothèse que l'équilibre thermique entre les atomes déposés et la surface du substrat se réalise très rapidement, on est conduit à conclure que les nucléï initiaux ont une taille minima qui dépend essentiellement de la température de la surface sur laquelle s'effectue le dépôt (puisque A dépend essentiellement de la température de la phase condensée) et de la tension superficielle du dépôt.

Par la suite, lorsque les nucléï ont atteint cette taille minima, ils croissent essentiellement du fait de la diffusion superficielle des atomes qui se déposent au voisinage. Il est donc nécessaire d'analyser ce processus de diffusion superficielle et pour cela il faut définir un modèle énergétique de surface adsorbante.

Deux types extrêmes de variation de l'énergie potentielle sur une surface peuvent être imaginés |10| :

1°) L'énergie potentielle est uniforme sur toute la surface. Dans ce cas un atome qui migre ne rencontre aucune barrière et sa migration ne demande aucune énergie d'activation.

2°) L'énergie potentielle est minima en un site d'adsorption et croît très rapidement lorsque l'on s'écarte de ce site. Si la courbe d'énergie potentielle ne se recouvre pas avec celle du site voisin, un atome ne peut migrer qu'en se désorbant d'abord et l'énergie d'activation de migration est la même que pour la désorption atomique.

Les résultats des études au microscope à émission de champ indiquent que la situation est intermédiaire entre les cas envisagés ci-dessus. Le recouvrement entre les courbes d'énergie potentielle de sites adjacents conduit à une énergie potentielle variant périodiquement sur la surface. La différence d'énergie entre les pics et les vallées est l'énergie d'activation pour la migration.

Dans ces conditions, compte tenu de l'hypothèse suivant laquelle le temps nécessaire pour que l'équilibre thermique entre l'atome qui se dépose et la surface du substrat se réalise est très bref, on montre que le temps de séjour τ_r d'un atome adsorbé sur le support est 25 :

$$\tau_r = \frac{h}{kT} \exp\left(\frac{\Delta G_{des}}{kT}\right) \qquad (3.22)$$

où T est la température de la surface du substrat et ΔG_{des} l'énergie libre d'activation de la désorption.

Mais les atomes adsorbés sont animés, du fait de l'agitation thermique, de vibrations normales à la surface du support. On peut donc considérer qu'un atome qui se déplace par diffusion superficielle, se déplace par sauts avec une distance caractéristique de saut a_o et une énergie libre d'activation de la diffusion ΔG_{diff}. Dans ces conditions, le coefficient de diffusion superficielle est |25| :

$$D = a_0^2 \frac{kT}{h} \exp\left(-\frac{\Delta G_{diff}}{kT}\right) \qquad (3.23)$$

La distance d parcourue par diffusion avant désorption est donnée par la formule d'Einstein :

$$d = \sqrt{2 D \tau_r} \qquad (3.24)$$

soit :

$$d = \sqrt{2} \cdot a_0 \exp\left(\frac{\Delta G_{des} - \Delta G_{diff}}{2\ kT}\right) \qquad (3.25)$$

Cette distance détermine l'aire sur laquelle chaque nucléï peut agir comme un pôle d'attraction pour les atomes isolés. La nucléation doit donc s'arrêter lorsque ces aires se recouvrent et le nombre de nucléï peut être déduit de la relation ci-dessus.

Si le dépôt continue, le nombre des nucléï ne peut plus augmenter et c'est la taille des nucléï préexistant qui augmente par diffusion superficielle des atomes isolés.

Il ne faut cependant pas perdre de vue que les considérations ci-dessus ont un caractère tout à fait qualitatif et doivent être considérées comme des moyennes statistiques.

V - *INFLUENCE D'UN CHAMP ELECTRIQUE SUR LA FORMATION DES FILMS*

V.1 - *Mécanismes d'action du champ électrique*

Envisageons de quelle manière la présence d'un champ électrique appliqué parallèlement au support pendant le dépôt peut influencer les mécanismes précédents.

Remarquons tout d'abord que les forces d'adsorption, c'est-à-dire les forces qui lient les atomes du dépôt au substrat, sont vraisemblablement des forces de Van der Waals, c'est-à-dire des forces d'origine électrique. Par suite, ainsi que l'a observé Hill |15|, la présence de charges électriques sur le support influence la nucléation. En conséquence, un champ électrique, appliqué dans les conditions indiquées, peut en modifiant la répartition des charges sur la surface adsorbante agir aussi sur le processus de nucléation.

D'autre part, au stade initial de la formation, une couche est formée de grains isolés et sa résistance électrique est infinie. Si un champ électrique uniforme est appliqué parallèlement au support, chaque grain est, du point

de vue électrostatique, un conducteur isolé influencé par le champ appliqué et par l'ensemble des autres grains. Il apparait donc des charges sur la surface du grain. Celui-ci étant isolé et en général initialement neutre, une partie de sa surface sera chargée positivement et l'autre partie négativement. Mais, quel que soit le signe des charges, leur présence se traduit par l'existence d'une pression électrostatique :

$$p = \frac{\sigma^2}{\varepsilon_0}$$

dirigée vers l'extérieur du conducteur. σ est la densité superficielle des charges.

L'existence de cette pression électrostatique modifie les conditions d'équilibre mécanique de la surface du nucléon initial c'est-à-dire qu'elle modifie la forme et la taille de ce nucléon ainsi qu'il résulte de la formule 3.10 qui s'écrit alors :

$$p + p'' - p' = \frac{2\gamma}{r} \qquad (3.26)$$

Cette relation montre que, toutes choses égales par ailleurs, le rayon de courbure de la surface du nucléon sera d'autant plus petit que la pression électrostatique sera plus grande. On serait donc tenté de conclure que la présence du champ électrique entraîne une diminution de la taille des nucléî initiaux. En fait, on retrouve de cette façon un résultat bien connu en électrostatique sous le nom de "pouvoir des pointes" et, pour conclure quant à l'action d'un champ électrique sur les dimensions des nucléî initiaux il faut reprendre le calcul de l'énergie libre du grain en tenant compte de l'existence du champ électrique.

Le champ électrique peut également provoquer l'apparition de forces attractives ou répulsives entre les grains déjà formés même si ceux-ci sont isolés et électriquement neutres. En effet, considérons un système de conducteurs isolés, soumis à l'action d'un champ électrique extérieur fixe. Chaque conducteur, limité par une surface S_i portera une densité superficielle de charges σ_i et une charge totale :

$$Q_i = \iint_{S_i} \sigma_i \, dS_i$$

Le potentiel $V(x, y, z)$ en chaque point de l'espace sera la somme de deux termes : l'un, $\phi(x, y, z)$ est dû aux charges $\sigma_i \, dS_i$ et l'autre,

$\phi'(x, y, z)$ dont dérive le champ extérieur est indépendant de ces charges. L'énergie électrostatique du système s'écrit |7| :

$$W = \sum_i \iint_{S_i} \int_0^{\sigma_i} V \, d\sigma_i \, dS_i$$

Chacune des intégrales de cette somme peut s'écrire :

$$\iint_{S_i} \int_0^{\sigma_i} V \, d\sigma_i \, dS_i = \iint_{S_i} \phi' \, dS_i \int_0^{\sigma_i} d\sigma_i + \iint_{S_i} \int_0^{\sigma_i} \phi \, d\sigma_i \, dS_i \qquad (3.27)$$

Compte tenu de la relation suivante : |8|

$$\iint_{S_i} \int_0^{\sigma_i} \phi \, d\sigma_i \, dS_i = \frac{1}{2} \iint_{S_i} \phi \, \sigma_i \, dS_i$$

On peut écrire (3.27) sous la forme :

$$\iint_{S_i} \int_0^{\sigma_i} V \, d\sigma_i \, dS_i = \frac{1}{2} \iint_{S_i} \phi' \sigma_i \, dS_i + \frac{1}{2} \iint_{S_i} (\phi + \phi') \, \sigma_i \, dS_i$$

mais le potentiel $V_i = \phi_i + \phi'_i$ est constant sur chaque conducteur donc :

$$W = \frac{1}{2} \sum_i \iint_{S_i} \phi' \, \sigma_i \, dS_i + \frac{1}{2} \sum_i V_i \, Q_i \qquad (3.28)$$

relation qui démontre que même si les conducteurs sont neutres ($Q_i = 0$) il existe une énergie d'interaction entre les conducteurs et le champ appliqué qui est liée aux charges $\sigma_i \, dS_i$ portées par chaque conducteur, donc qui dépend de leurs positions relatives. Il en résulte qu'il peut exister des forces d'interaction d'origine électrique entre les conducteurs.

5.2 - *Calcul de la force qui s'exerce entre deux sphères conductrices isolées, placées dans un champ uniforme*

Afin de savoir si les forces intergranulaires d'origine électrique dont il vient d'être question peuvent influencer le mécanisme de formation des films, il importe de connaître l'ordre de grandeur de leur intensité. Pour cela, j'ai calculé la force qui s'exerce entre deux sphères S_1 et S_2, isolées et initialement neutres, placées dans un champ électrique $\vec{E_0}$, uniforme en l'abscence des sphères (figure 3.11).

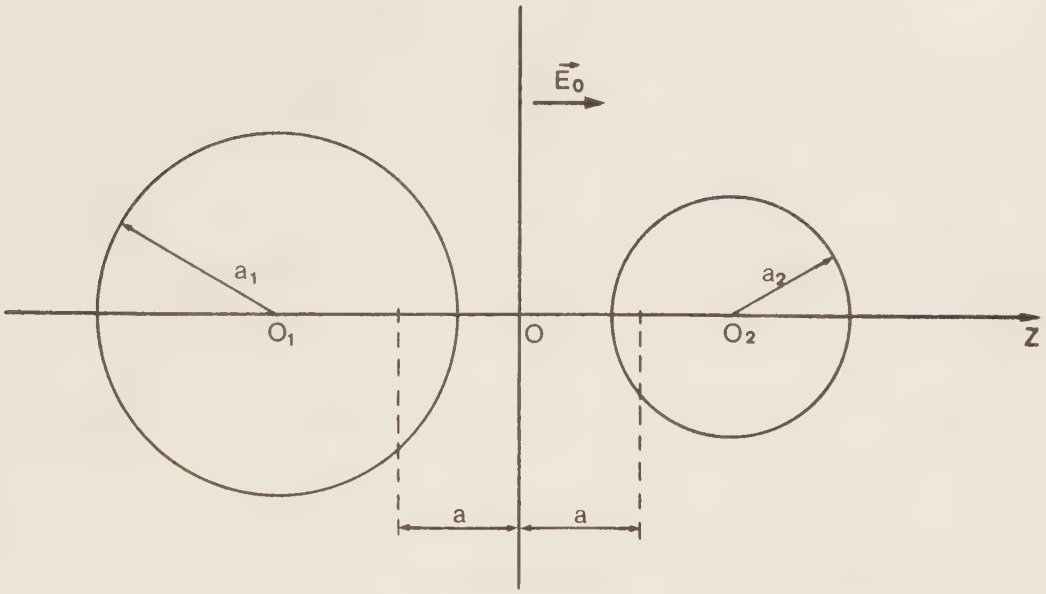


FIGURE 3.11

On utilise un système de coordonnées bi-sphériques défini par les relations suivantes :

$$x = \frac{a \sin \eta \cos \alpha}{\text{ch } \xi - \cos \eta} \qquad y = \frac{a \sin \eta \sin \alpha}{\text{ch } \xi - \cos \eta} \qquad z = \frac{a \text{ sh } \xi}{\text{ch } \xi - \cos \eta} \tag{3.29}$$

a est une constante positive et les nouvelles coordonnées α, ξ, η varient dans les limites suivantes :

$$0 < \alpha < 2\pi \qquad -\infty < \xi < +\infty \qquad 0 < \eta < \pi \tag{3.30}$$

α est l'angle azimuthal autour de l'axe oz et les surfaces ξ = cte sont des sphères d'équation :

$$x^2 + y^2 + (z - a \coth \xi)^2 = \left(\frac{a}{\text{sh } \xi}\right)^2 \tag{3.31}$$

La sphère S_1 est centrée au point O_1 de cote :

$$z_1 = a \coth \xi_1 \tag{3.32}$$

Elle a pour rayon :

$$a_1 = - \frac{a}{\operatorname{sh} \xi_1} \tag{3.33}$$

ξ_1 étant négatif.

La sphère S_2 est centrée au point O_2 de cote :

$$z_2 = a \coth \xi_2 \tag{3.34}$$

son rayon est (ξ_2 est positif) :

$$a_2 = \frac{a}{\operatorname{sh} \xi_2} \tag{3.35}$$

La distance b qui sépare les centres des sphères est :

$$b = a_1 \operatorname{ch} \xi_1 + a_2 \operatorname{ch} \xi_2 \tag{3.36}$$

Le champ électrique $\vec{E_0}$ est parallèle à oz.

On calcule le potentiel $V(\xi, \eta, \alpha)$ créé par l'ensemble des charges, c'est-à-dire celles qui créent le champ $\vec{E_0}$ et celles qui se développent par influence sur les sphères, en écrivant qu'en tout point de l'espace extérieur aux conducteurs le potentiel satisfait à l'équation de Laplace :

$$\Delta V = 0$$

et que sur les deux sphères il satisfait aux conditions aux limites :

$$V = V_1 \quad \text{sur} \quad S_1$$
$$V = V_2 \quad \text{sur} \quad S_2$$

V_1 et V_2 étant des constantes.

Ayant déterminé $V(\xi, \eta, \alpha)$ on calcule la densité de charges sur chaque sphère en appliquant la loi de Coulomb puis on calcule l'énergie W donnée par l'intégrale de 3.28.

On calcule ensuite la force f qui s'exerce entre les deux sphères en écrivant que :

$$f = - \frac{\partial W}{\partial b} \tag{3.37}$$

Afin d'alléger l'exposé, j'ai renvoyé ces calculs très longs à la fin de ce mémoire (Annexe B).

Disons simplement que les calculs se simplifient si l'on remarque que le système étant de révolution autour de oz le potentiel ne dépend pas de α.

L'équation de Laplace en coordonnées bi-sphériques est une équation à variables séparées dont la solution est obtenue sous la forme d'un développement en série de polynomes de Legendre et l'énergie W s'exprime finalement par la relation suivante si $Q_1 = Q_2 = 0$.

$$
\begin{aligned}
W = {} & V_1 E_o \left[\pi \varepsilon_0 a_1^2 \operatorname{ch} \xi_1 + 4\pi \varepsilon_0 a^2 \sum_{\ell=0}^{\infty} (\ell + \tfrac{1}{2}) (\alpha_\ell + \beta_{\ell 1}) \right] \\
& - V_2 E_0 \left[\pi \varepsilon_0 a_2^2 \operatorname{ch} \xi_2 + 4\pi \varepsilon_0 a^2 \sum_{\ell=0}^{\infty} (\ell + \tfrac{1}{2}) (\alpha_\ell + \beta_{\ell 2}) \right] \\
& - 8\pi \varepsilon_0 E_0^2 a^2 \sum_{\ell=0}^{\infty} (\ell + \tfrac{1}{2})^2 (2\alpha_\ell + \beta_{\ell 1} + \beta_{\ell 2}) \\
& - \pi \varepsilon_0 E_0^2 \left[a_1^3 (1 + \operatorname{ch}^2 \xi_1) + a_2^3 (1 + \operatorname{ch}^2 \xi_2) \right]
\end{aligned}
\qquad \text{B.24}
$$

ε_0 est la perméabilité électrique du vide et ℓ un entier variant de 0 à l'infini.

$$
\alpha_\ell = \frac{e^{-(\ell + \frac{1}{2})(\xi_2 - \xi_1)}}{\operatorname{sh} (\ell + \frac{1}{2}) (\xi_2 - \xi_1)}
$$

$$
\beta_{\ell 1} = e^{(2\ell + 1)\xi_1} \coth (\ell + \tfrac{1}{2} (\xi_2 - \xi_1)
$$

$$
\beta_{\ell 2} = e^{-(2\ell + 1)\xi_2} \coth (\ell + \tfrac{1}{2}) (\xi_2 - \xi_1)
$$

L'expression de la force F est bien entendu plus compliquée encore si bien qu'elle n'est pas exploitable directement pour une interprétation physique.

J'ai donc procédé à une évaluation numérique de la force F dans un cas particulier. Je me suis fixé les rayons a_1 et a_2 des sphères et

la distance b de leurs centres de la façon suivante :

$$a_1 = 50 \text{ Å}$$
$$a_2 = 10 \text{ Å}$$
$$b = 70 \text{ Å}$$

Ces valeurs étant d'un ordre de grandeur comparable à celui des dimensions des grains et des distances intergranulaires dans un film.

En procédant alors de la manière indiquée dans l'annexe B j'obtiens :

$$f = - 25,4\pi \varepsilon_0 E_0^2 10^{-9} \text{ N}$$

Soit, pour un champ appliqué de 20 V/cm une force attractive (signe -) entre les sphères de :

$$f = - 2,78 \, 10^{-12} \text{ N}$$

A titre de comparaison indiquons que la force qui s'exerce entre deux charges élémentaires ($e = 1,6 \, 10^{-19}$ cb) situées à 70 Å l'une de l'autre est :

$$f = 4,71 \, 10^{-12} \text{ N}$$

Il en résulte que la force intergranulaire peut fort bien jouer un rôle dans le processus de formation des films.

V.3 - *La diffusion superficielle à l'échelle granulaire et la résistance électrique*

Un film est constitué par un grand nombre de grains. Si ceux-ci étaient identiques entre eux et répartis régulièrement, la force d'origine électrique qui s'exercerait sur chacun d'eux serait statistiquement nulle. Mais il n'en est pas ainsi car on observe dans un film des grains de formes et de dimensions très différentes et, si on considère en particulier un grain de très petites dimensions situé entre deux îlots beaucoup plus importants, la résultante des forces électriques qui s'exercent sur ce grain dépend non seulement des distances qui le séparent des îlots voisins mais aussi de la forme et des

dimensions de ces derniers si bien qu'il n'y a aucune raison pour qu'elle soit nulle. En conséquence, si la température est suffisamment élevée, ce très petit grain pourra se déplacer à la surface du support pour être absorbé par un grain plus important.

Notons qu'il a été effectivement observé que le nombre des grains de petites dimensions situés dans l'espace séparant des îlots plus gros est moins important lorsque le film est déposé en présence d'un champ électrique que lorsqu'il n'y a pas de champ |14|.

Ce processus se traduit évidemment par un accroissement des dimensions moyennes des îlots qui constituent le film ce qui entraîne une diminution de l'énergie d'activation θ du processus responsable de la conductivité électrique des films très minces : l'effet tunnel (cf. § III.1 de ce chapitre) mais cela ne provoque pas nécessairement une diminution de la résistance électrique du film.

En effet, s'il existe des grains très petits situés entre des îlots plus importants, les électrons peuvent passer d'un gros îlot au gros îlot voisin soit directement, soit en passant par les grains intermédiaires. L'absorption de ceux-ci va entraîner.

a) Une augmentation de résistance si le courant qui passe par ces grains est important par rapport au courant total.

b) Une diminution de résistance si ce courant est de moindre importance et si les grains absorbés se fixent sur le pourtour de l'absorbeur provoquant ainsi une diminution de la distance entre les gros îlots.

c) Une augmentation de résistance si le courant passant par les grains intermédiaires ayant la même importance que dans le paragraphe b ci-dessus, les atomes provenant des grains absorbés se répartissent sur toute la surface des îlots absorbeurs ce qui n'entraîne qu'une diminution peu importante de la distance entre les gros îlots.

La façon selon laquelle les îlots vont augmenter leurs dimensions, soit dans le plan du film (cas b), soit sans direction préférentielle (cas c), dépend de la forme d'équilibre de l'îlot. Or, celle-ci correspond à un minimum de l'énergie libre de l'îlot ; c'est donc le calcul de cette dernière qui nous permettra d'expliquer pourquoi j'ai observé une augmentation de la résistance des films de Nickel sous l'action du champ électrique alors que d'autres auteurs |2| |14| |16| ont observé une diminution de résistance.

Remarque Le raisonnement du paragraphe V.2 n'est valable que lorsque le film ne conduit pas car lorsqu'il devient conducteur, les îlots qui le forment ne sont plus isolés du point de vue électrostatique. Il peut cependant exister des forces attractives d'origine électrique entre eux du fait qu'ils ne sont plus nécessairement neutres. Il se produit des transferts de charges de l'un à l'autre par effet Tunnel.

Remarquons d'autre part que même si le film dans son ensemble n'est pas conducteur, il peut se faire qu'en certains points du film et en présence d'un champ électrique un transfert d'électrons d'un îlot à l'îlot voisin se produise par effet tunnel, le processus d'activation du phénomène étant celui envisagé par Hartman |12|. Il en résulte alors entre les deux îlots considérés une force attractive beaucoup plus importante que celle envisagée au paragraphe V.2.

V.4 - *Forme d'équilibre des îlots*

Les îlots qui constituent initialement un film mince ont des formes quelconques et le calcul de leur énergie libre n'est en général pas possible. Il ne peut être mené à bien qu'en assimilant les îlots à des gouttes liquides de formes géométriques simples (sphères ou ellipsoïdes). Mais nous voulons seulement savoir si lors de l'arrivée de nouveaux atomes sur un îlot, ceux-ci vont se fixer sur le pourtour de l'îlot ou se répartir sur toute sa surface. Pour cela, nous assimilerons les îlots à des ellipsoïdes de révolution dont le grand axe est dans le plan du film et nous interpréterons un accroissement de l'excentricité comme traduisant une croissance préférentielle de l'îlot dans le plan du film.

Considérons donc un ellipsoïde de révolution conducteur, placé dans un champ électrique uniforme $\vec{E_0}$ que nous supposerons, pour simplifier,

parallèle au grand axe de l'ellipsoïde. Celui-ci étant de très petites dimensions, nous supposerons qu'il constitue une particule ferromagnétique monodomaine. Il sera donc aimanté à saturation parallèlement à son grand axe. Nous désignerons par M_s l'aimantation à saturation et par Q la charge électrique totale que porte éventuellement le grain.

Son énergie libre totale F peut s'écrire sous la forme d'une somme :

$$F = F_p + F_\Omega + F_m + F_Q + F_E \tag{3.38}$$

F_p est l'énergie interne en volume appelée parfois énergie de pression. Elle est proportionnelle au volume V du grain et nous poserons :

$$F_p = - \alpha V \tag{3.39}$$

F_Ω est l'énergie superficielle, produit de la tension superficielle γ par l'aire Ω de la surface qui limite le grain :

$$F_s = \gamma \cdot \Omega \tag{3.40}$$

Ces deux termes définissent à eux seuls l'énergie libre du grain lorsqu'il n'est pas ferromagnétique, qu'il ne porte aucune charge électrique et qu'il n'est soumis à aucun champ.

Dans le cas d'un échantillon ferromagnétique, il faut ajouter un terme correspondant à l'énergie magnétique qui dans le cas d'un grain monodomaine isolé est égale à l'énergie du champ démagnétisant :

$$F_m = + \frac{1}{2} N M_s^2 \tag{3.41}$$

N étant le facteur démagnétisant et μ_0 la perméabilité magnétique du vide.

Si le grain porte en outre une charge électrique totale Q il faudra ajouter un terme d'énergie électrostatique :

$$F_Q = \frac{1}{2} \frac{Q^2}{C} \tag{3.42}$$

C étant la capacité du conducteur isolé.

Enfin, s'il est soumis à un champ électrique $\vec{E_0}$ il faut ajouter un nouveau terme électrostatique :

$$F_E = -\frac{1}{2}\int_V \vec{P} \cdot \vec{E_0}\, dv \qquad (3.43)$$

où $\vec{P}$ est le vecteur polarisation électrique. On calcule ce terme en considérant le grain comme un ellipsoïde diélectrique placé dans le vide et soumis au champ $\vec{E_0}$ puis dans l'expression obtenue, on fait tendre vers l'infini la constante diélectrique introduite pour trouver l'expression de F_E pour un conducteur |7|.

Lorsque le grain appartient à une collectivité de particules, ce qui est le cas dans un film très mince, les relations précédentes doivent être corrigées pour tenir compte des interactions électriques et magnétiques entre les particules. En fait, sauf si le grain considéré est sur le bord du film, nous pouvons admettre, en première approximation, et compte tenu de nos hypothèses, que, par raison de symétrie, l'ensemble des particules crée au voisinage de la particule considérée un champ démagnétisant et un champ dépolarisant uniformes et parallèles au grand axe de l'ellipsoïde. Dans ces conditions, il suffira pour tenir compte des interactions entre particules de multiplier F_E et F_m par un facteur numérique convenable, inférieur à l'unité, qui dépend bien entendu des dimensions des particules et des distances intergranulaires. Dans le cas de particules ferromagnétiques, identiques, régulièrement distribuées, Prache |24| a montré que pour les interactions magnétiques, le facteur numérique en question pouvait s'exprimer par la relation :

$$k = \frac{b}{a + b} \qquad (3.44)$$

dans laquelle b est la distance intergranulaire et a le côté de la particule dans le plan du film.

Nous introduirons un facteur analogue ℓ pour les intéractions électriques et comme nous nous intéresserons seulement à de petites déformations des îlots, nous supposerons ces facteurs constants dans la suite.

Dans ces conditions, nous pourrons écrire l'énergie libre d'un ellipsoïde représentant un îlot d'un film très mince sous la forme :

$$F = -\frac{4}{3}\pi r^3 \alpha + 2\pi r^2 \gamma \left[\frac{\sqrt[3]{1-e^2}}{e\sqrt[6]{1-e^2}} + \frac{\arcsin e}{e}\right]$$
$$+ k\frac{\pi}{3}\frac{r^3}{\mu_0} M_s^2 \frac{1-e^2}{e^3}\left[\operatorname{Log}\frac{1+e}{1-e} - 2e\right]$$
$$+ \frac{Q^2}{16\pi\varepsilon_0 r}\frac{\sqrt[3]{1-e^2}}{e}\operatorname{Log}\frac{1+e}{1-e} \qquad (3.45)$$
$$- \frac{4\ell}{3}\pi r^3 \varepsilon_0 E_0^2 \frac{e^3}{(1-e^2)\left[\operatorname{Log}\frac{1+e}{1-e} - 2e\right]}$$

e est l'excentricité de l'ellipsoïde et r le rayon de la sphère de même volume que l'ellipsoïde.

Cette formule est trop compliquée pour permettre une analyse, même qualitative, du comportement de l'îlot. Aussi, supposerons-nous les déformations petites et développerons-nous l'expression ci-dessus en série des puissances de e en nous arrêtant au premier terme qui contient tous les paramètres du problème, c'est-à-dire, au terme en e^4. On obtient alors F sous la forme :

$$F = F_0 - e^2 (A - Be^2) + \ldots \qquad (3.46)$$

avec :

$$F_0 = 4\pi r^2 \gamma - \frac{4}{3}\pi r^3 \alpha + \frac{2k\pi}{3\mu_0} r^3 M_s^3 + \frac{Q^3}{8\pi\varepsilon_0 r} - \frac{2\pi\ell}{3} r^3 \varepsilon_0 E_0^2 \qquad (3.47)$$

$$A = \frac{4\pi r^3}{45}\left(\ell \varepsilon_0 E_0^2 + \frac{k M_s^2}{\mu_0}\right) \qquad (3.48)$$

$$B = \frac{1}{45}\frac{137}{8}\pi r^2 \gamma - \frac{Q^2}{8\pi\varepsilon_0 r} - \frac{2\pi r^3}{7}\left(\frac{118}{15}\ell \varepsilon_0 E_0^2 + \frac{6k M_s^2}{\mu_0}\right) \qquad (3.49)$$

F_0 est l'énergie libre d'un îlot sphérique de même volume que l'ellipsoïde considéré.

Ces relations nous permettent de tirer un certain nombre de conclusions quant à l'influence du champ électrique sur la forme et les dimensions des îlots initiaux.

Tout d'abord la présence du champ électrique facilite la nucléation en ce sens que le rayon moyen des germes de condensation (cf. § 4 de ce chapitre) est plus petit lorsqu'un champ électrique existe que lorsqu'il n'existe pas.

En effet, la condition $A_r = 0$ (cf. § 4) qui définit le rayon du germe de condensation par la relation 3.14 est équivalente, compte tenu des relations 3.10 à 3.12 à la condition :

$$\frac{dF}{dr} = 0 \qquad (3.50)$$

et, si on considère des germes sphériques, cette condition appliquée à la relation 3.47 s'écrit, après avoir multiplié tous les termes par r^2 :

$$r^4 \left(\frac{2k\pi M_s^2}{\mu_0} - 4\pi\alpha - 2\pi \ell \varepsilon_0 E_0^2\right) + 8\pi\gamma r^3 - \frac{Q^2}{8\pi\varepsilon_0} = 0 \qquad (3.51)$$

équation que nous noterons, pour simplifier l'écriture :

$$\lambda r^4 + \mu r^3 - \nu = 0 \qquad (3.52)$$

Lorsque la charge électrique totale de l'îlot est nulle ($Q = \nu = 0$) cette équation se simplifie et le rayon du germe est :

$$r^* = -\frac{\mu}{\lambda} = \frac{4\gamma}{2\alpha - \frac{k M_s^2}{\mu_0} + \ell \varepsilon_0 E_0^2} \qquad (3.53)$$

Si, en outre, le champ électrique appliqué pendant le dépôt est nul ($E_0 = 0$) le rayon du germe est :

$$r_0^* = \frac{4\gamma}{2\alpha - \frac{k M_s^2}{\mu_0}} \qquad (3.54)$$

Il est alors évident que :

$$r^* < r_0^*$$

ce qui démontre notre proposition.

Lorsque l'îlot n'est pas électriquement neutre ($Q \neq 0$) on obtient graphiquement la solution de l'équation 3.53 (figure 3.12).

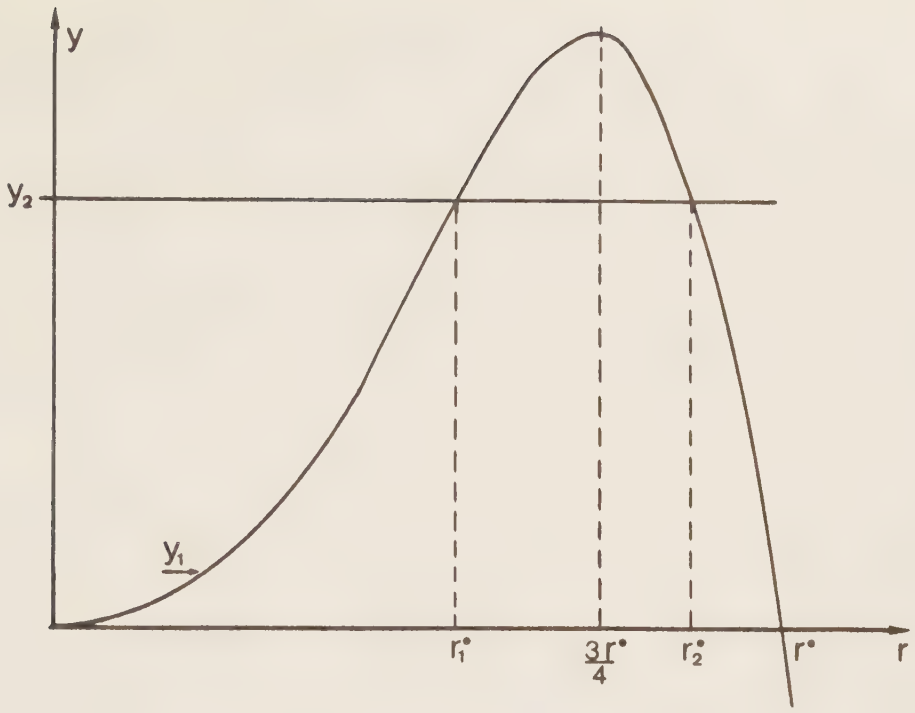


FIGURE 3.12

Le rayon du germe de condensation est l'abscisse du point d'intersection de la courbe d'équation :

$$y_1 = \lambda r^4 + \mu r^3 \qquad (3.55)$$

avec la droite d'équation

$$y_2 = \nu \qquad (3.56)$$

La fonction y_1 s'annule pour $r = 0$ et $r = r^*$, elle est positive pour $r < r^*$ et son maximum est obtenu pour $r = \frac{3}{4} r^*$.

La figure 3.12 montre que si ν est supérieur au maximum de y_1 il n'y a pas de nucléation possible ce qui correspond au cas très improbable où presque tous les atomes de l'îlot sont ionisés, les forces de Coulomb empêchent alors la formation de l'îlot.

Lorsque ν est inférieur au maximum de y_1, l'équation 3.52 a deux solutions r_1^* et r_2^*. Toutes deux sont inférieures à r^* donc à fortiori à r_o^*. On en conclut que lorsque l'îlot n'est pas électriquement neutre, l'effet de la charge qu'il porte est analogue à celui du champ électrique ; elle entraîne une diminution du rayon des germes de condensation.

Intéressons nous maintenant à ce qui se passe au stade suivant de la formation du film. Un îlot ayant été formé dans un champ électrique donné, de nouveaux atomes viennent d'arriver sur sa surface. A partir de cet instant, nous considérons le volume de l'îlot comme constant.

La température étant suffisamment élevée, les nouveaux atomes possèdent une certaine mobilité sur la surface de l'îlot et ils vont se répartir de façon à minimiser l'énergie libre totale de l'îlot. Or, celle-ci n'est fonction que de l'excentricité e et si la dérivée $\frac{dF}{de}$ est positive, une diminution d'excentricité entraîne une diminution d'énergie et les nouveaux atomes vont se répartir de telle façon que la forme de l'îlot tende vers celle d'une sphère. Si, au contraire, $\frac{dF}{de}$ est négative, les nouveaux atomes vont se fixer sur le pourtour de l'îlot. La migration des atomes à la surface de l'îlot s'arrêtera lorsque l'excentricité aura une valeur e_0 telle que :

$$\left(\frac{dF}{de}\right)_{e_0} = 0 \qquad (3.57)$$

De la relation 3.46, on déduit :

$$\frac{dF}{de} = 2e\,(2Be^2 - A) \qquad (3.58)$$

L'excentricité e est toujours positive, il en est de même de A d'après la relation 3.48. Quant à B, la relation 3.49 montre qu'il peut devenir négatif si Q ou E_0 deviennent grands mais en général, le terme en γ est supérieur aux autres et B est positif.

Dans ces conditions, la dérivée $\frac{dF}{de}$ sera positive si :

$$e^2 > \frac{A}{2B} \qquad (3.59)$$

et négative si :

$$e^2 < \frac{A}{2B} \qquad (3.60)$$

et la forme d'équilibre d'un îlot sera celle d'un ellipsoïde d'excentricité :

$$e_0 = \frac{A}{2B} \qquad (3.61)$$

Nous pouvons donc décrire la croissance d'un îlot de la façon suivante : L'îlot initial est caractérisé par le rayon r de la sphère de même volume et par son excentricité e_0 donnée par la relation précédente. De nouveaux atomes arrivent, la nouvelle forme d'équilibre de l'îlot sera caractérisée par un rayon r' et une excentricité e'_0 telle que :

$$e'_0 = \frac{A'}{2B'} \qquad (3.62)$$

puisque A et B sont des fonctions de r et de la charge Q qui peut varier si certains des nouveaux atomes sont ionisés.

Si e'_0 est supérieur à e_0, nous dirons que la croissance de l'îlot se fait de préférence dans le plan du film. Dans ce cas, la distance intergranulaire peut diminuer et la résistance électrique aussi.

Si e'_0 est inférieur à e_0, la distance intergranulaire peut augmenter et la résistance électrique aussi.

Les deux relations précédentes jointes aux relations 3.48 et 3.49 montrent que la forme d'équilibre des îlots et leur mode de croissance dépend, pour un champ électrique donné, de la tension superficielle γ et des dimensions de l'îlot donc de la nature du matériau déposé et de celle du substrat. Il n'est donc pas étonnant qu'on observe un accroissement de la résistance des films de nickel déposés en présence d'un champ électrique alors que, pour d'autres métaux, tels que l'or |2| ou le plomb |16|, on observe une diminution de résistance.

D'autre part, pour un matériau donné, la forme d'équilibre et le mode de croissance des îlots dépendent de E_0^2, ce qui explique qu'on observe une relation entre la résistance électrique du film et l'intensité du champ appliqué (figure 3.3). En particulier, il ressort de la relation 3.49 que si le champ appliqué E_0 et le rayon de la sphère de même volume que l'îlot sont suffisamment grands, le facteur B peut être négatif. Dans ce cas, la relation 3.61 n'a plus de signification, $\frac{dF}{de}$ est toujours négative, l'îlot devient instable et il se scinde en plusieurs îlots plus petits qui ont chacun un facteur B positif. Ceci peut rendre compte de l'augmentation rapide de résistance observée

quel que soit le métal déposé lorsque le champ électrique atteint des valeurs de l'ordre de 60 V/cm à 100 V/cm (cf. figure 3.3 et référence 2).

V.5 - *Conclusion*

La relation entre la résistance électrique du film, la forme d'équilibre et le mode de croissance des îlots est très complexe, elle dépend en particulier de la façon dont les îlots sont distribués à la surface du support, aussi échappe-t-elle à toute analyse précise.

Il ressort simplement des paragraphes précédents que la présence de charges électriques sur les îlots a un effet exactement semblable à celui d'un champ électrique, parallèle au support, appliqué dès le début du dépôt, ce qui a été observé expérimentalement par Hill |14|. Mais il n'est pas nécessaire pour que la diffusion superficielle à l'échelle granulaire contribue à la croissance des îlots de supposer, comme l'ont fait d'autres auteurs |2||14|, que les îlots sont chargés. L'action du seul champ électrique sur des îlots isolés et initialement neutres peut expliquer ce phénomène (cf. § V.3).

Enfin, il faut remarquer que les raisonnements précédents ne sont rigoureusement valables que tant que le film n'est pas conducteur. Mais si, lorsqu'un champ électrique a été appliqué pendant le dépôt, la résistance électrique, au moment où s'établit la conduction, est très différente de ce qu'elle serait si aucun champ n'avait été appliqué, il semble évident qu'une certaine différence subsiste lorsque le film devient plus épais, surtout que les principaux processus envisagés ci-dessus restent efficaces tant que le film a une structure granulaire ; le phénomène de conduction donnant seulement un rôle prépondérant aux effets des charges électriques portées par les îlots.

VI - *INFLUENCE D'UN CHAMP ELECTRIQUE SUR L'EVOLUTION SPONTANEE DES FILMS*

Nous allons montrer que l'accélération de l'évolution spontanée sous l'action d'un champ électrique peut s'interpréter si l'on admet que la variation spontanée de la résistance électrique d'un film après la fin du dépôt est due à la diffusion superficielle des grains très petits qui se sont formés dans l'espace séparant des grains plus gros. L'évolution peu importante des lames continues étant

due essentiellement à la baisse de température de la surface du substrat qui suit la fin du dépôt même si l'on maintient constante la température du substrat |1|.

VI.1 - *Evolution spontanée en l'abscence de champ électrique*

En l'abscence de tout champ électrique appliqué nous envisageons le problème de la façon suivante : chaque cristallite est soumis de la part du support à une force aléatoire $F(t)$ que l'on peut décomposer de la façon suivante :

$$F(t) = -\beta M v + M A(t) \qquad (3.63)$$

où le terme $-\beta M v$ représente la force de frottement qui s'oppose au mouvement de la particule de vitesse v et de masse M et où $M A(t)$ est une force stochastique de valeur moyenne nulle qui représente les effets des vibrations des atomes du support sur la particule.

En poursuivant ce raisonnement, sensiblement identique à celui de Langevin relatif au mouvement Brownien, on retrouve une formule analogue à celle de la diffusion |17| avec un coefficient de diffusion :

$$D = \frac{k T}{M \beta} \qquad (3.64)$$

la distance d parcourue pendant l'intervalle de temps t par une particule est alors :

$$d = \sqrt{2 Dt} \qquad (3.65)$$

Il en résulte que ce sont les particules de faible masse donc de petites dimensions qui se déplaceront.

Considérons dans ces conditions un film granulaire formé de grains assez grands, ayant la forme de sphéroïdes aplatis de rayon a. Nous supposerons qu'à l'instant où cesse le dépôt que nous appellerons l'instant initial, il existe une répartition uniforme de grains identiques, de petites dimensions, à l'intérieur de l'espace intergranulaire. Compte tenu des relations ci-dessus, le nombre de ces petites particules qui auront atteint à l'instant t un grain donné G est égal au nombre des particules situées à l'intérieur d'un cercle centré sur l'axe du grain et de rayon :

$$r = a + \sqrt{2Dt} \qquad (3.66)$$

et qui ont une vitesse dirigée dans le sens convenable.

Or, si l'on considère les particules qui diffusent à partir d'un point donné A, seules celles dont le vecteur vitesse est dirigé dans l'angle 2θ sous lequel de A on voit le grain G peuvent atteindre G (figure 3.13).

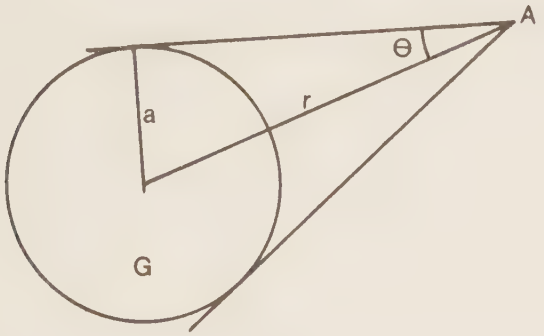


FIGURE 3.13

Si l'on suppose que la diffusion est uniforme en direction et s'il y a, à l'instant t, n.ds particules dans l'élément de surface ds qui entoure le point A, il y en a :

$$n \frac{\theta}{\pi} ds$$

qui ont un vecteur vitesse convenablement dirigé.

Les particules étant réparties uniformément, le nombre de particules qui se trouvent à l'instant $t = 0$ à l'intérieur de la couronne circulaire de rayon r et d'épaisseur dr est :

$$n_0 \, 2\pi \, r \, dr$$

donc le nombre de particules qui se dirigent vers le grain G est :

$$dN = 2n_0 \, \theta \, r \, dr \qquad (3.67)$$

par conséquent le nombre de particules qui, à l'instant t, auront atteint le grain G est :

$$N(t) = n_0 \sqrt{2D} \int_0^t (a + \sqrt{2Dt'}) \, Ar \, c \sin \left(\frac{a}{a + \sqrt{2Dt'}} \right) dt' \qquad (3.68)$$

puisque :

$$\theta = Ar \, c \sin \frac{a}{r}$$

Il en résulte que la taille des grains qui constituent le film sera une fonction du temps. Par suite, la résistance électrique du film sera également une fonction du temps. Si le film est très mince, le processus ci-dessus se traduira par une diminution du nombre des grains de telle sorte qu'à la fin de l'évolution spontanée le film sera constitué par des grains plus gros mais en plus petit nombre qu'à l'instant initial, les distances intergranulaires étant plus grandes la résistance du film aura augmenté. Pour les films plus épais, le même phénomène se produira mais les grains atteindront une taille suffisante pour que cela se traduise par une diminution de la distance intergranulaire et peut être même par la coalescence des grains. La courbe de résistance en fonction du temps présentera un maximum quelques instants après la fin du dépôt et la résistance finale pourra être inférieure à la résistance initiale (figure 3.6).

Les films encore plus épais sont des films lacunaires et il est évident qu'un accroissement de la taille des éléments conducteurs se traduira par une diminution de résistance, l'évolution spontanée devenant moins importante au fur et à mesure que les films deviennent plus épais c'est-à-dire que la taille des éléments conducteurs est initialement plus grande (figure 3.7).

VI.2 - *Evolution spontanée en présence d'un champ électrique*

En présence d'un champ électrique le problème est modifié parce qu'à la force aléatoire $A(t)$ on ajoute une force déduite de la relation 3.28. Il en résulte une augmentation de la vitesse de déplacement des particules dans la direction de la force électrique. D'autre part, on ne peut plus supposer que les particules vont diffuser dans toutes les directions d'une manière uniforme à partir d'un point A. Il y aura au contraire une direction privilégiée de déplacement. D'une manière plus précise, étant donné que la force électrique est fonction de la distance particule-grain, on pourra supposer que les particules se dirigeront vers le grain le plus proche, c'est-à-dire que toutes les particules qui sont situées à l'intérieur d'un cercle de rayon r_0 entourant le grain G considéré se dirigeront vers ce grain alors que toutes celles qui sont situées à l'extérieur de ce cercle se dirigeront vers d'autres grains dont elles sont plus proches.

En conséquence, sous l'action du champ électrique, les particules de petites dimensions seront plus rapidement absorbées par les grains de grandes dimensions qu'en l'absence de champ. Il en résulte que l'évolution spontanée sera plus rapide : on atteindra plus vite un palier d'équilibre pour la résistance.

D'autre part, la variation totale de la résistance au cours de l'évolution spontanée sera aussi plus importante car toutes les particules déposées dans l'espace intergranulaire seront absorbées, ce qui n'est pas nécessairement le cas en l'abscence de champ électrique.

Ces conclusions sont conformes aux résultats expérimentaux représentés sur les figures 3.6 et 3.7.

Chapitre IV

Effet Hall
Phénoménologie et mesure

I - *PHENOMENOLOGIE DE L'EFFET HALL DANS LES METAUX*

L'espace étant rapporté à un trièdre orthonormé $ox_1x_2x_3$, nous considérons un échantillon métallique, homogène et isotrope, placé dans un champ d'induction magnétique $\vec{B}$. Il existe un gradient de température à l'intérieur de l'échantillon et on y fait circuler un courant électrique de vecteur densité de courant $\vec{J}$.

Les lois de la conduction électrique et thermique qui relient le vecteur champ électrique $\vec{E}$ et le vecteur densité de courant thermique $\vec{q}$ aux vecteurs $\vec{j}$ et $\vec{G} = -\overrightarrow{\text{grad}\, T}$ peuvent s'écrire |12| :

$$E_i = \rho_{ik}\, j_k + \varepsilon_{ik}\, G_k$$

$$q_i = -\pi_{ik}\, j_k + \lambda_{ik}\, G_k \qquad (4.1)$$

$$(i, k = 1, 2, 3)$$

ρ_{ik}, ε_{ik}, π_{ik}, λ_{ik} sont les composantes de quatre tenseurs de rang 2 qui représentent respectivement la résistivité électrique, l'effet thermoélectrique, l'effet Peltier et la conductivité thermique. Ces tenseurs sont des fonctions de l'induction magnétique $\vec{B}$ et leurs composantes satisfont aux relations de réciprocité d'Onsager :

$$\rho_{ik}\,(B) = \rho_{ki}\,(-B)$$

$$\lambda_{ik}\,(B) = \lambda_{ki}\,(-B) \qquad (4.2)$$

$$T\,\varepsilon_{ik}\,(B) = \pi_{ki}\,(-B)$$

Chaque composante tensorielle caractérise un effet galvanomagnétique ou thermogalvanomagnétique. On peut, en principe, mesurer chacun de ces effets indépendamment des autres en imposant aux courants $\vec{j}$ et $\vec{q}$, aux gradients $\vec{G}$ et $\vec{E}$ et à l'induction $\vec{B}$ des directions et des valeurs numériques convenables.

Pour mesurer l'effet Hall, on donne généralement à l'échantillon la forme d'une plaque rectangulaire très longue et de faible épaisseur disposée comme l'indique la figure 4.1

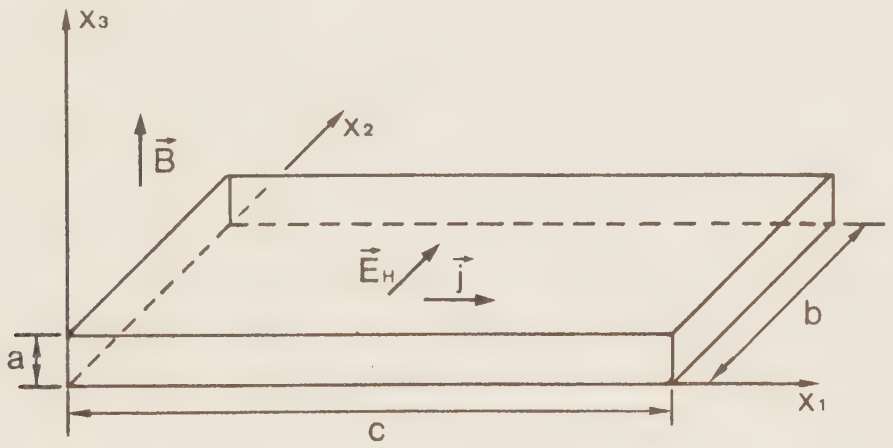


FIGURE 4.1

Le courant électrique circule parallèlement à ox_1 et l'induction magnétique est dirigée suivant ox_3 de telle sorte que, compte tenu des relations d'Onsager et de l'isotropie dans le plan perpendiculaire à $\vec{B}$, les expressions (4.1) deviennent :

$$
\begin{aligned}
E_1 &= \rho_{11}\, j_1 + \varepsilon_{11}\, G_1 - \varepsilon_{21}\, G_2 \\
E_2 &= \rho_{21}\, j_1 + \varepsilon_{21}\, G_1 + \varepsilon_{11}\, G_2 \\
E_3 &= \varepsilon_{33}\, G_3 \qquad\qquad (4.3) \\
q_1 &= -\pi_{11}\, j_1 + \lambda_{11}\, G_1 - \lambda_{21}\, G_2 \\
q &= -\pi_{21}\, j_1 + \lambda_{21}\, G_1 + \lambda_{11}\, G_2 \\
q_3 &= \lambda_{33}\, G_3
\end{aligned}
$$

La seconde des relations (4.3) montre qu'il apparait dans ces conditions une différence de potentiel électrique entre les faces de la plaque parallèles au plan $x_1 ox_3$.

Si l'on suppose la température parfaitement uniforme à l'intérieur de l'échantillon ($\vec{G} = 0$) cette différence de potentiel s'appelle la <u>tension de Hall</u> V_H. Elle est reliée au champ de Hall $E_H = E_2$ et à la <u>résistivité de Hall</u> $\rho_H = \rho_{21}$ par les expressions :

$$V_H = - E_H \, b = - \rho_H \, b \, j_1 \qquad (4.4)$$

Si l'on introduit l'intensité $I = j_1 \, ab$ du courant total qui traverse l'échantillon, on obtient :

$$\rho_H = - \frac{V_H \; a}{I} \qquad (4.5)$$

Lorsque l'on mesure ρ_H en fonction de l'induction on constate que, tout au moins dans la limite où l'induction n'est pas très grande, ρ_H est une fonction linéaire de B dans les métaux non ferromagnétiques

$$\rho_H = R_H \, B \qquad (4.6)$$

R_H s'appelle le <u>coefficient de Hall isotherme</u>. C'est une caractéristique du métal considéré que la théorie rattache directement au nombre de porteurs libres du métal.

II - *PHENOMENOLOGIE DE L'EFFET HALL DANS LES FERROMAGNETIQUES*

II.1 - *Effet champ - Effet aimantation*

Dans un échantillon non ferromagnétique isotrope, la résistivité en l'absence de champ magnétique n'a qu'une composante ρ et si les conditions d'isothermie ($\vec{G} = 0$) sont réalisées la loi d'Ohm s'écrit :

$$\vec{E} = \rho \, \vec{j} \qquad (4.7)$$

A l'intérieur d'un échantillon ferromagnétique, l'induction $\vec{B}$ qui est liée au champ magnétique $\vec{H}$ et à l'aimantation $\vec{M}$ par la relation :

$$\vec{B} = \mu_0 \vec{H} + \vec{M} \tag{4.8}$$

n'est jamais nulle. Par suite, à l'intérieur de chaque domaine aimanté à saturation dans la direction de vecteur unitaire $\vec{u}$ la loi d'Ohm s'écrit sous forme tensorielle :

$$\overrightarrow{E_i} = \rho_{ik} (\vec{u}) \, j_k \tag{4.9}$$

avec

$$\rho_{ik} (\vec{u}) = \rho_{ki} (- \vec{u}) \tag{4.10}$$

Expression formellement identique à celle de la loi d'Ohm dans un échantillon monocristallin non ferromagnétique |12|.

Comme tout tenseur de rang 2, le tenseur de résistivité peut être séparé en une partie symétrique :

$$s_{ik} (\vec{u}) = \frac{1}{2} \left[\rho_{ik} + \rho_{ki} \right] \tag{4.11}$$

et une partie antisymétrique :

$$a_{ik} (\vec{u}) = \frac{1}{2} \left[\rho_{ik} - \rho_{ki} \right] \tag{4.12}$$

Il résulte des relations d'Onsager (4.10) que $a_{ik} (\vec{u})$ change de signe lorsque l'on renverse la direction d'aimantation alors que $s_{ik} (\vec{u})$ est une fonction paire de $\vec{u}$. On peut donc considérer que $a_{ik} (\vec{u})$ représente un <u>effet Hall généralisé</u> et $s_{ik} (\vec{u})$ un effet de magnétorésistance généralisé |1|.

Pour retrouver les expressions classiques de l'effet Hall et de la magnétorésistance, on développe le tenseur $\rho_{ik} (\vec{u})$ en série des puissances croissantes des cosinus directeurs u_k de l'aimantation et on admet que l'on peut limiter le développement aux termes du second degré

$$\rho_{ik} (\vec{u}) = \rho_{ik} (o) + R_{ik\ell} \, u_\ell + R_{ik\ell m} \, u_\ell \, u_m + \ldots \tag{4.13}$$

alors :

$$a_{ik} (\vec{u}) = R_{ik\ell} \, u_\ell$$

$$s_{ik} (\vec{u}) = \rho_{ik} (o) + R_{ik\ell m} \, u_\ell \, u_m$$

On trouvera un tableau des composantes indépendantes de $R_{ik\ell}$ et de $R_{ik\ell m}$ pour les systèmes cubique et hexagonal dans l'ouvrage cité sous la référence 1. Etant donné que nous nous intéresserons uniquement à des échantillons polycristallins de Nickel, nous les supposerons isotropes. Alors, de simples considérations de symétrie montrent que $R_{ik\ell}$ n'a qu'une seule composante indépendante que nous appellerons par la suite ρ_{Hs} car c'est la résistivité de Hall que l'on mesure dans un échantillon aimanté à saturation normalement à son plan. De même, le tenseur ρ_{ik} (o) n'a qu'une seule composante indépendante : la résistivité ρ qu'aurait l'échantillon s'il n'était pas ferromagnétique et le tenseur $R_{ik\ell m}$ a deux composantes indépendantes $\Delta\rho_{\perp}$ et $\Delta\rho_{//}$. Nous poserons :

$$\rho_{\perp s} = \rho + \Delta\rho_{\perp}$$

$$\rho_{//s} = \rho + \Delta\rho_{//}$$

$\rho_{\perp s}$ est la résistivité de l'échantillon aimanté à saturation dans une direction perpendiculaire au courant et $\rho_{//s}$ sa résistivité lorsqu'il est aimanté à saturation parallèlement au courant.

En explicitant (4.9) compte tenu de (4.13) et des considérations de symétrie précédentes, on montre que la loi d'Ohm dans un échantillon ferromagnétique isotrope s'écrit :

$$\vec{E} = \rho_{\perp s}\,\vec{j} + (\rho_{//s} - \rho_{\perp s})\,(\vec{u}.\vec{j})\,\vec{u} + \rho_{Hs}\,\vec{u} \wedge \vec{j} \qquad (4.14)$$

Si on considère un échantillon multidomaine, ayant la forme d'une plaque rectangulaire (figure 4.1), le courant électrique étant parallèle à ox_1, le champ E_2 dans la direction ox_2 sera, à l'intérieur de chaque domaine :

$$E_2 = (\rho_{//s} - \rho_{\perp s})\,u_1\,u_2\,j_1 + \rho_{Hs}\,u_3\,j_1 \qquad (4.15)$$

La valeur moyenne de E_2, prise sur l'ensemble des domaines de l'échantillon, qui donnera naissance à une différence de potentiel entre les faces parallèles à $x_1 ox_3$ sera :

$$\langle E_2 \rangle = (\rho_{//s} - \rho_{\perp s})\,\langle u_1\,u_2 \rangle\,j_1 + \rho_{Hs}\,\langle u_3 \rangle\,j_1 \qquad (4.16)$$

En l'absence de champ appliqué, $\vec{u}$ prend toutes les directions possibles à l'intérieur de l'échantillon et les valeurs moyennes de ses cosinus directeurs sont nulles :

$$\langle u_1\,u_2 \rangle = \langle u_3 \rangle = 0$$

Il n'y aura pas d'effet Hall observable.

Lorsqu'un champ magnétique extérieur est appliqué, il n'en est plus ainsi et en général $\langle u_1 u_2 \rangle$ et $\langle u_3 \rangle$ sont différents de zéro.

Seul le second terme du second membre de (4.16) correspond à l'effet Hall proprement dit car il est dû à la composante de l'aimantation perpendiculaire à la fois au courant j_1 et au champ électrique induit E_2. Le premier terme, lié à l'aimantation dans le plan de l'échantillon est un effet galvanomagnétique plan qui peut perturber la mesure de l'effet Hall. On l'appelle parfois improprement "l'effet Hall plan".

Supposons le champ magnétique extérieur appliqué suivant ox_3. Du fait de la rotation de l'aimantation dans certains domaines et du déplacement des parois qui séparent les domaines de telle sorte que, les domaines favorablement orientés par rapport au champ croissent aux dépens des autres, il va apparaître une aimantation globale $\langle M \rangle$ dans la direction ox_3 alors qu'en général l'aimantation globale dans une direction quelconque perpendiculaire au champ sera nulle.

On pourra alors admettre que :

$$\langle u_1 . u_2 \rangle = 0 \quad \text{et} \quad \langle u_3 \rangle = \frac{\langle M \rangle}{M_s} \tag{4.17}$$

M_s étant l'intensité d'aimantation à saturation. On mesurera dans la direction ox_2 une résistivité de Hall :

$$\rho_H = \frac{\langle E_2 \rangle}{j_1} = \rho_{Hs} \frac{\langle M \rangle}{M_s}$$

si on pose :

$$\rho_{H_s} = R_1 M_s \tag{4.18}$$

on obtient :

$$\rho_H = R_1 \langle M \rangle \tag{4.19}$$

R_1 s'appelle le coefficient de Hall "aimantation" de l'échantillon.

Remarquons que les effets galvanomagnétiques définis ci-dessus sont des effets spontanés |15| en ce sens qu'ils existent même si aucun champ magnétique extérieur n'est appliqué. De telle sorte qu'il y a en fait deux contributions

aux effets galvanomagnétiques dans les ferromagnétiques : celle que nous venons de décrire, provenant de la présence d'une aimantation spontanée et celle provenant directement du champ appliqué. C'est pourquoi il faut remplacer la relation (4.19) par la relation suivante :

$$\rho_H = R_0 \mu_0 H_3^i + R_1 \langle M_3 \rangle \qquad (4.20)$$

dans laquelle H_3^i est la composante du champ magnétique parallèle à ox_3 à l'intérieur de l'échantillon, μ_0 la perméabilité du vide ($\mu_0 = 4\pi\ 10^{-7}$ Henry/mètre) et R_0 le coefficient de Hall "champ" qui correspond à l'effet Hall que présenterait un échantillon non ferromagnétique de même structure électronique que l'échantillon considéré.

Cette relation, proposée initialement par Smith et Sears et simultanément par Pugh |16|, rend fort bien compte des résultats expérimentaux si on admet que R_0 et R_1 sont des constantes pour un échantillon donné à température donnée.

II.2 - *Résistivité de Hall d'un échantillon monodomaine*

Nous désignerons par $\vec{B^1}$, $\vec{H^1}$, $\vec{M}$ l'induction magnétique, le champ magnétique et l'aimantation à l'intérieur de l'échantillon. Nous appellerons $\vec{B}$ et $\vec{H}$ l'induction et le champ magnétique à l'extérieur de l'échantillon. Nous avons en chaque point :

$$\vec{B^1} = \mu_0 \vec{H^1} + \vec{M} \qquad (4.21)$$

$$\vec{B} = \mu_0 \vec{H} \qquad (4.22)$$

La composante normale de l'induction devant être continue $\vec{B^1}$ et $\vec{B}$ sont liés sur la surface de l'échantillon par :

$$\vec{B^1}.\vec{n} = \vec{B}.\vec{n} \qquad (4.23)$$

$\vec{n}$ étant un vecteur unitaire porté par la normale à l'échantillon et dirigé vers l'extérieur.

D'autre part, en chaque point intérieur à l'échantillon, nous pouvons écrire :

$$\vec{H^1} = \vec{H} - [N]\ \vec{M} \qquad (4.24)$$

[N] étant un tenseur introduit par le champ démagnétisant créé par les charges magnétiques fictives qui apparaissent sur la surface de l'échantillon avec une densité

$$\omega = \vec{M}.\vec{n} \qquad (4.25)$$

Le vecteur aimantation $\vec{M}$ sera dirigé en chaque point de l'échantillon de manière à minimiser l'énergie libre totale. Dans le cas d'un échantillon monodomaine, homogène et isotrope, on peut remplacer cette condition relative à l'énergie totale par une condition identique relative à la densité d'énergie à l'intérieur de l'échantillon. De telle sorte que si l'on considère, en l'abscence de tout champ extérieur, un tel échantillon ayant la forme d'une plaque rectangulaire, la densité d'énergie libre qui se réduit alors à celle du champ démagnétisant $\overrightarrow{H_d}$, sera minimale lorsque l'aimantation sera parallèle à la longueur de l'échantillon puisque cette disposition rendra $\overrightarrow{H_d}$ minimum. Autrement dit, notre échantillon monodomaine sera en l'absence de tout champ appliqué, aimanté à saturation dans la direction ox_1. Nous pourrons écrire :

$$\vec{M} = (M_s, 0, 0) \qquad (4.26)$$

Si on applique un champ $\vec{H}$ parallèle à ox_3, on aura en chaque point :

$$\vec{M} = (M_s \sin\theta, 0, M_s \cos\theta) \qquad (4.27)$$

θ, angle que fait $\vec{M}$ avec ox_3 étant déterminé par la condition :

$$\frac{dF}{d\theta} = 0 \qquad (4.28)$$

F étant la densité d'énergie libre à l'intérieur de l'échantillon.

F sera la somme de l'énergie due au champ appliqué et de l'énergie due au champ démagnétisant :

$$F = - \vec{H}.\vec{M} - \frac{1}{2} \overrightarrow{H_d} \vec{M} \qquad (4.29)$$

La plaque étant très mince, le tenseur [N] se réduira pratiquement à une seule composante N relative à ox_3.

$$\overrightarrow{H_d} = - N.\overrightarrow{M_3} \qquad (4.30)$$

par suite :

$$F = - H M_s \cos \theta + \frac{1}{2} N M_s^2 \cos^2 \theta \qquad (4.31)$$

La condition (4.28) donne :

$$\cos \theta = \frac{H}{N M_s} \qquad (4.32)$$

En assimilant l'échantillon à une plaque très mince indéfinie :

$$N \simeq \frac{1}{\mu_0} \qquad (4.33)$$

de telle sorte que :

$$\cos \theta = \frac{\mu_0 H}{M_s} = \frac{B}{M_s} \qquad (4.34)$$

Tant que l'on aura $B < M_s$ le champ interne sera d'après (4.24) :

$$H^i = H - N M_3 = H - \frac{B}{\mu_0} = 0 \qquad (4.35)$$

et la résistivité de Hall (4.20) sera :

$$\rho_H = R_1 . M_3 = R_1 B \qquad (4.36)$$

Lorsque l'on aura $B > M_s$, l'échantillon sera saturé parallèlement à ox_3 ; par suite :

$$M_3 = M_s$$

$$H^i = H - \frac{M_s}{\mu_0}$$

d'où :

$$\rho_H = R_0 B + (R_1 - R_0) M_s \qquad (4.37)$$

Dans un échantillon monodomaine, la courbe représentant la résistivité de Hall en fonction de l'induction appliquée sera composée de deux segments de droites d'équations (4.36) et (4.37) qui se rencontreront au point de coordonnées (figure 4.2)

$$B = M_s \qquad (4.38)$$

$$\rho_H = \rho_{Hs} = R_1 M_s \qquad (4.39)$$

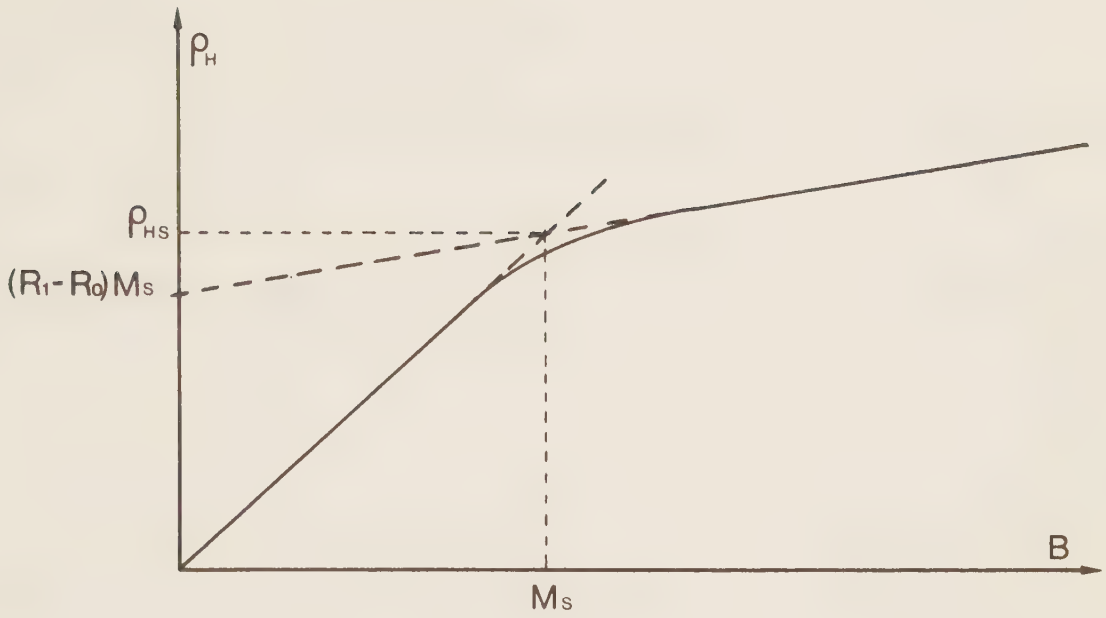


FIGURE 4.2

L'étude de la résistivité de Hall d'un échantillon monodomaine permet de mesurer R_0, R_1 et M_S.

En fait, bien qu'un échantillon monodomaine puisse théoriquement exister sous forme de film très mince |6|, c'est un cas idéal qui ne s'observe pratiquement jamais.

II-3 - *Résistivité de Hall d'un échantillon multidomaines*

Dans un échantillon multidomaines soumis à un champ magnétique, plusieurs processus d'aimantation, rotations, déplacements de parois, interviennent simultanément si bien qu'il est impossible de décrire la loi d'aimantation en fonction du champ appliqué sauf lorsque celui-ci est très faible ou très grand.

Lorsque le champ appliqué est faible, la loi d'aimantation découverte par Lord Rayleigh en 1887 et justifiée théoriquement par Néel en 1942 |7| peut s'exprimer par la relation :

$$\langle M \rangle = \mu_0 \left[\chi_0 H^i \pm \frac{\alpha}{2} (H^i)^2 \right] \qquad (4.40)$$

où la susceptibilité initiale χ_0 est constante à l'intérieur du domaine de validité de cette loi. Il en est de même de α.

Nous négligerons le terme en $(H^i)^2$: procédé dont la justification apparaîtra plus loin.

Etant donné la forme de nos échantillons (figure 4.1) l'apparition d'une aimantation globale dans la direction ox_3 entrainera l'apparition d'un champ démagnétisant de direction opposée et nous admettrons que l'on peut encore écrire :

$$H_3^i = H - N \langle M \rangle \qquad (4.41)$$

$$H_1^i = H_2^i = 0$$

où le facteur démagnétisant N est une constante.

On en déduit la relation entre $\langle M \rangle$ et le champ appliqué :

$$\langle M \rangle = \frac{\mu_0 \chi_0}{1 + N \mu_0} H \qquad (4.42)$$

En reportant (4.41) et (4.42) dans (4.20) on obtient :

$$\rho_H = \left[R_0 \left(1 - \frac{\mu_0 \chi_0 N}{1 + \mu_0 \chi_0 N}\right) + R_1 \frac{\chi_0}{1 + \mu_0 \chi_0 N} \right] B \qquad (4.43)$$

En fait, puisque nous avons négligé le terme en $(H^i)^2$ dans (4.40) cette expression représente l'équation de la tangente en $B = 0$ à la courbe $\rho_H = f(B)$ et si l'on peut admettre

$$\mu_0 N \simeq 1$$

nous pourrons l'écrire :

$$\left(\frac{\partial \rho_H}{\partial B}\right)_{B \to 0} = R_0 + (R_1 - R_0) \frac{\chi_0}{1 + \chi_0} \qquad (4.44)$$

On retrouvera l'expression classique :

$$\left(\frac{\partial \rho_H}{\partial B}\right)_{B \to 0} = R_1 \qquad (4.45)$$

Si χ_0 est très grand $(\chi_0 \to \infty)$

Dans les champs élevés, au voisinage de la saturation, il n'y a plus de déplacements de parois et l'aimantation globale ne varie que par suite des rotations. L'échantillon devient pratiquement monodomaine. Cependant, les vecteurs aimantation n'ont pas la même direction en tout point de l'échantillon, ils se répartissent approximativement avec une symétrie de révolution autour du champ appliqué, si bien que l'aimantation globale $<M>$ qui apparait dans la direction du champ appliqué est liée au champ interne H^i par la loi établie expérimentalement par Weiss et Forrer, justifiée théoriquement par les travaux d'Akulov, Gauss, Holstein et Primakoff, Néel |8|.

$$<M> = M_s \left(1 - \sum_{\ell} \frac{C_\ell}{(H^i)^\ell}\right) + \mu_0 \chi_s H^i \qquad (4.46)$$

Les C_ℓ sont des constantes et le terme $\mu_0 \chi_s H^i$ qui représente la variation de l'aimantation spontanée avec le champ est une fonction croissante de la température qui ne prend d'importance qu'au voisinage du point de Curie |8|.

Dans nos échantillons nous pourrons admettre avec une bonne approximation qu'au voisinage de la saturation et au dessus :

$$H^i = H - \frac{<M>}{\mu_0} \qquad (4.47)$$

Pour H suffisamment grand les termes en $\frac{1}{(H^i)^\ell}$ sont négligeables de telle sorte que :

$$<M> = \frac{M_s}{1 + \chi_s} + \frac{\chi_s}{1 + \chi_s} B \qquad (4.48)$$

En reportant (4.47) et (4.48) dans (4.20) on obtient :

$$\rho_H = \left[R_0 + \frac{(R_1 - R_0)\,\chi_s}{1 + \chi_s}\right] B + \frac{R_1 - R_0}{1 + \chi_s} M_s \qquad (4.49)$$

Lorsque la température est suffisamment éloignée du point de Curie, χ_s est très petit $(\chi_s = 12\pi\ 10^{-6}$ dans le nickel massif à la température ambiante |8|) et (4.49) se ramène à :

$$\rho_H = R_0 B + (R_1 - R_0) M_s \qquad (4.50)$$

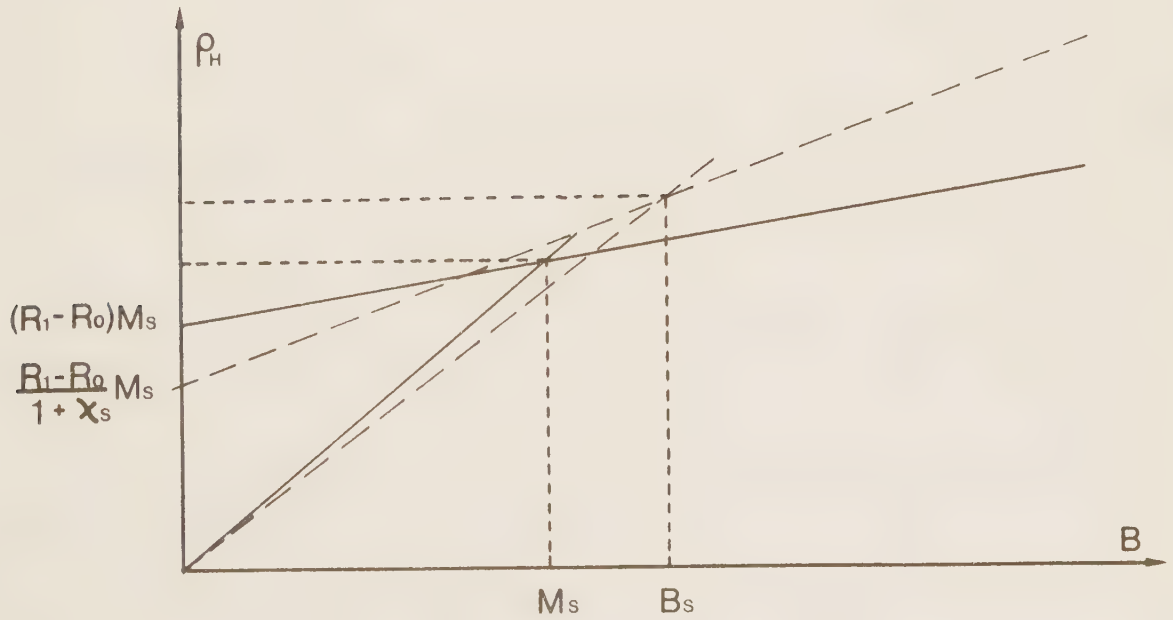
Ainsi, l'étude de la courbe $\rho_H = f(B)$ d'un échantillon multidomaine, nous amène à considérer deux droites : la tangente à l'origine d'équation (4.43) et la droite (4.49) représentant ρ_H dans les champs intenses.

En mesurant les pentes de ces deux droites et l'ordonnée à l'origine de (4.49) on obtient trois équations indépendantes pour déterminer six inconnues R_0, R_1, M_s, χ_0, χ_s et N. Le problème est en général insoluble.

En fait, sauf au voisinage du point de Curie on peut admettre $\chi_s \simeq 0$ et si χ_0 peut être considéré comme très grand devant 1 les relations (4.43) et (4.49) se simplifient et deviennent (4.45) et (4.50). Les pentes des deux droites nous donnent directement R_0 et R_1 et l'abscisse de leur point d'intersection fournit M_s.

Remarquons en particulier que si χ_0 n'est pas très grand devant 1 l'abscisse du point d'intersection des deux droites peut être notablement différente de M_s. Par exemple si on suppose $\mu_0 N \simeq 1$ les deux droites d'équations (4.44) et (4.49) se couperont au point d'abscisse (figure 4.3) :

$$B_s = \frac{1 + \chi_0}{\chi_0 - \chi_s} M_s \qquad (4.51)$$



Trait continu $\chi_0 \to \infty$ $\chi_s \to 0$

Trait interrompu $\mu_0 N \simeq 1$ χ_0 et χ_s quelconques

FIGURE 4.3

II.4 - *Hystérésis de la résistivité de Hall*

Il résulte de l'hypothèse des effets spontanés que la résistivité de Hall doit présenter les mêmes caractères d'irréversibilité que l'aimantation. En particulier s'il existe un phénomène d'hystérésis pour l'aimantation on doit observer également un phénomène d'hystérésis pour la résistivité de Hall. En général, étant donné la forme de l'échantillon et, par suite, l'importance du champ démagnétisant, l'axe ox_3, normal au plan de l'échantillon, est un axe difficile, par conséquent le cycle d'hystérésis dans la direction ox_3 est très aplati et donc à peu près inobservable. Mais on peut imaginer que, par suite d'une forte anisotropie perpendiculaire, l'axe ox_3 devienne un axe facile ; ce peut être, par exemple, le cas pour un échantillon monocristallin ou pour un film mince déposé dans un champ magnétique convenable.

Supposons donc que l'échantillon possède une aimantation rémanente $\langle \vec{M}_r \rangle$. Si $\langle M_r \rangle$ est suffisamment faible on sera encore dans le domaine de Rayleigh et on pourra écrire au voisinage de $H = 0$:

$$\langle M \rangle = \langle M_r \rangle + \mu_0 \chi_0 \left(H^i - H_r^i\right) \tag{4.52}$$

en négligeant les termes du second degré et en appelant H_r^i le champ interne à la rémanence :

$$H_r^i = - N \langle M_r \rangle \tag{4.53}$$

Si $\langle M_r \rangle$ n'est pas très petit on pourra toujours définir une susceptibilité différentielle χ au voisinage de $H = 0$ telle que :

$$\frac{d \langle M \rangle}{dH^i} = \mu_0 \chi \tag{4.54}$$

relation qui, si χ varie suffisamment lentement avec H^i, pourra être mise sous la forme (4.52) en remplaçant χ_0 par χ.

Avec ces hypothèses, en reprenant le raisonnement qui nous a conduit à la formule (4.43) on obtiendra l'équation de la tangente en $B = 0$ à la courbe $\rho_H = f(B)$ sous la forme :

$$\rho_H = (R_1 - R_0 \mu_0 N) \langle M_r \rangle + \left[R_0 + (R_1 - R_0 \mu_0 N) \frac{\chi}{1 + \mu_0 N \chi}\right] B \tag{4.55}$$

La pente est donnée par une relation identique à (4.43) à ceci près qu'il faut remplacer dans (4.43) χ_0 par χ. Son ordonnée à l'origine n'est pas nulle, c'est la résistivité de Hall à la rémanence :

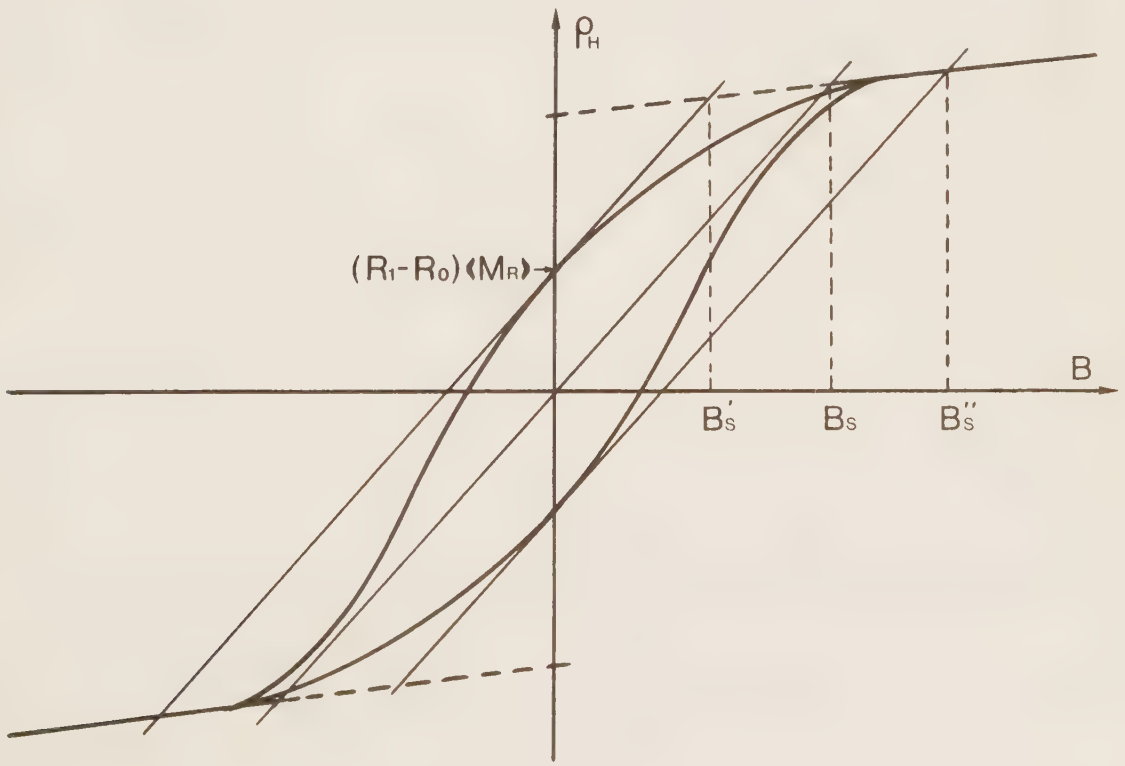
$$\rho_{Hr} = (R_1 - R_0\ \mu_0\ N)\ \langle M_r \rangle \qquad (4.56)$$

Au dessus de la saturation ρ_H sera toujours représentée par la droite d'équation (4.49) et l'abscisse du point d'intersection des deux droites ne dépendra plus seulement de M_s et des susceptibilités χ et χ_s mais aussi de $\langle M_r \rangle$. On obtiendra deux valeurs selon que l'on tracera la tangente (4.55) au point d'abscisse $\langle M_r \rangle$ ou $-\langle M_r \rangle$. Pour $\mu_0 N = 1$ on obtiendra (figure 4.4) :

$$B'_s = \left[M_s - \langle M_r \rangle (1 + \chi_s)\right] \frac{1 + \chi}{\chi - \chi_s} \qquad (4.57)$$

$$B''_s = \left[M_s + \langle M_r \rangle (1 + \chi_s)\right] \frac{1 + \chi}{\chi - \chi_s} \qquad (4.58)$$

Le cycle d'hystérésis étant symétrique par rapport à l'origine on pourra éliminer le terme en $\langle M_r \rangle$ en traçant la parallèle passant par l'origine à la droite d'équation (4.55). L'abscisse du point d'intersection avec (4.49) sera alors donnée par (4.51).



On suppose $\mu_0 N = 1$

FIGURE 4.4

III - MESURE DE L'EFFET HALL

L'étude expérimentale de l'effet Hall d'un échantillon ferromagnétique est une opération délicate. Il faut en effet déterminer avec une précision suffisante la pente de la tangente en $B = 0$ à la courbe $\rho_H = f(B)$ ainsi que celle de la droite représentant ρ_H au dessus de la saturation. Dans un cas comme dans l'autre ceci nécessite la mesure de variations de tension de l'ordre de quelques microvolts. Les sources d'erreurs sont de deux sortes : celles provenant des effets thermogalvanomagnétiques associés à l'effet Hall et celles inhérentes à la réalisation du dispositif expérimental.

III.1 - *Les effets thermogalvanomagnétiques associés*

Pour réaliser à peu près parfaitement la condition d'isothermie $\vec{G} = 0$ il faudrait plonger l'échantillon à étudier dans un bain isotherme ; condition absolument irréalisable dans mes mesures où l'échantillon est un film mince déposé sur un support isolant, maintenu sous ultra-vide pendant toute la durée de l'expérience. Dans ces conditions, aux températures considérées, inférieures à 500°C, le rayonnement de l'échantillon est négligeable. Il en est donc de même des échanges thermiques avec l'extérieur si bien que la condition réalisée est la condition d'adiabatisme $\vec{q} = 0$.

Il résulte alors des trois dernières relations (4.3) que le passage du courant électrique j_1 dans l'échantillon va entraîner l'apparition d'un gradient thermique longitudinal $(-G_1)$

$$G_1 = \frac{\pi_{11}\,\lambda_{11} + \pi_{21}\,\lambda_{21}}{\lambda_{11}^2 + \lambda_{21}^2}\, j_1 \qquad (4.59)$$

et transversal :

$$G_2 = \frac{\pi_{21}\,\lambda_{11} - \pi_{11}\,\lambda_{21}}{\lambda_{11}^2 + \lambda_{21}^2}\, j_1 \qquad (4.60)$$

En reportant ces expressions dans la seconde des relations (4.3) on obtient le champ électrique transversal E_2 différent du champ de Hall E_H :

$$E_2 = \left[\rho_H + \varepsilon_{21}\,\frac{\pi_{11}\,\lambda_{11} + \pi_{21}\,\lambda_{21}}{\lambda_{11}^2 + \lambda_{21}^2} + \varepsilon_{11}\,\frac{\pi_{21}\,\lambda_{11} - \pi_{11}\,\lambda_{21}}{\lambda_{11}^2 + \lambda_{21}^2}\right] j_1 \qquad (4.61)$$

Il est commode, pour la suite, d'introduire dans cette relation les coefficients classiques des effets thermogalvanomagnétiques associés à l'effet Hall. Nous écrirons d'abord les formules relatives aux métaux non ferromagnétiques |12|. Pour cela remarquons qu'en règle générale nous avons :

$$\lambda_{21} << \lambda_{11} \tag{4.62}$$

Si bien que la relation (4.59) peut s'écrire :

$$G_1 = \left(\frac{\pi_{11}}{\lambda_{11}} + \frac{\pi_{21}\,\lambda_{21}}{\lambda_{11}^2}\right) j_1 \tag{4.63}$$

C'est l'expression classique de l'effet Nernst adiabatique qui se traduit dans un échantillon parcouru par un courant électrique par l'apparition d'un gradient thermique parallèle au courant :

L'expression (4.60) s'écrit :

$$G_2 = \frac{\pi_{21}}{\lambda_{11}}\, j_1 - \frac{\lambda_{21}}{\lambda_{11}} \cdot \frac{\pi_{11}}{\lambda_{11}}\, j_1 \tag{4.64}$$

On reconnait dans le premier terme du second membre l'expression classique de l'effet Ettingshausen traduisant l'apparition d'un gradient thermique perpendiculaire au courant électrique. Cet effet est caractérisé habituellement par un coefficient P tel que :

$$P \,.\, B = \frac{\pi_{21}}{\lambda_{11}}$$

B étant l'induction magnétique (parallèle à ox_3).

Le second terme du second membre de (4.64) correspond à l'effet Righi-Leduc, traduisant l'apparition d'un gradient thermique transversal lorsqu'un gradient longitudinal existe dans l'échantillon. On le caractérise habituellement par un coefficient S tel que :

$$S \,.\, B = -\frac{\lambda_{21}}{\lambda_{11}}$$

d'où :

$$G_2 = S \,.\, B\; G_1$$

ici G_1 est créé par effet Nernst isotherme.

$$G_1 = \frac{\pi_{11}}{\lambda_{11}}\, j_1$$

Le gradient $(-G_1)$ crée par effet Ettingshausen-Nernst un champ électrique transversal E_2 :

$$E_2 = \varepsilon_{21} G_1 = Q \cdot B G_1$$

c'est le second terme du crochet dans (4.60).

Le gradient $(-G_2)$ crée également un champ E par effet Seebeck (effet thermoélectrique) :

$$E_2 = \varepsilon_{11} G_2$$

c'est le troisième terme du crochet dans (4.61).

Ainsi le champ E_2 que l'on mesure dans un échantillon d'un métal non ferromagnétique placé sous vide est compte tenu de (4.6) :

$$E_2 = \left[R_H + \varepsilon_{11} P + (Q+S) \frac{\pi_{11}}{\lambda_{11}} - SPQ \cdot B^2\right] B j_1 \qquad (4.65)$$

Les coefficients R_H, S, P, Q sont des constantes et il résulte des relations d'Onsager que ε_{11}, π_{11}, λ_{11} sont des fonctions paires de l'induction. Par suite le champ électrique transversal E_2 est la somme d'un terme linéaire en B : le champ de Hall et de termes de degré 3 en B.

Dans un échantillon ferromagnétique le raisonnement du paragraphe II.1 relatif au tenseur des effets galvanomagnétiques spontanés $\rho_{ik}(\vec{u})$ s'applique, mutatis mutandis, aux trois autres tenseurs des relations (4.1). Il en résulte qu'il faudra introduire dans les relations précédentes, à la place de chaque coefficient S, P, Q, deux coefficients : l'un correspondant à l'effet champ, l'autre à l'effet aimantation. Les correspondances, indiquées par une flèche dans les relations ci-dessous, sont les suivantes :

$$\begin{aligned} SB &\to S_0 \mu_0 H^i + S_1 M \\ PB &\to P_0 \mu_0 H^i + P_1 M \\ QB &\to Q_0 \mu_0 H^i + Q_1 M \end{aligned} \qquad (4.66)$$

De même les coefficients π_{11}, λ_{11}, ε_{11} ont dans les ferromagnétiques un comportement analogue à la résistivité (effet de magnétorésistance). C'est-à-dire qu'il faut remplacer chacun d'eux par deux composantes : l'une correspondant au cas où le courant ou bien le gradient de température est perpendiculaire

à l'aimantation, l'autre au cas où il lui est parallèle. Nous écrirons comme pour la résistivité :

$$\pi_{\perp s} = \pi + \Delta\pi_{\perp}$$

$$\pi_{//s} = \pi + \Delta\pi_{//}$$

et des relations analogues pour ε et λ.

L'analyse phénoménologique des paragraphes II.2 et II.3, basée sur la relation (4.20) s'applique mot pour mot à chacune des relations (4.66). Les contributions de chacun de ces effets au champ E_2 étant additives, il est facile d'écrire l'équation de la tangente en $B = 0$ à la courbe : $\frac{E_2}{j_1} = f(B)$ en négligeant tous les termes de degré supérieur à 1 en B. Si on suppose $\mu_0 N \simeq 1$ et χ_0 très grand, on obtient au lieu de (4.45) :

$$\left[\frac{\partial}{\partial B}\left(\frac{E_2}{j_1}\right)\right]_{B\to 0} = R_1 + \varepsilon P_1 + \frac{\pi}{\lambda}(S_1 + Q_1) \qquad (4.67)$$

Au dessus de la saturation chacun des effets Ettingshausen, Righi-Leduc et Ettingshausen-Nernst sera caractérisé par l'analogue de (4.50) si la température est telle que l'on puisse supposer $\chi_s \simeq 0$. Si bien qu'en substituant dans (4.61) les relations ainsi obtenues aux termes SB, PB, QB et en remplaçant π_{11}, λ_{11}, ε_{11} par $\pi_{\perp s}$, $\lambda_{\perp s}$, $\varepsilon_{\perp s}$ puisque l'échantillon est alors aimanté à saturation perpendiculairement aux courants et aux gradients thermiques, on obtient l'équation de la courbe :

$$\frac{E_2}{j_1} = f(B)$$

$$\frac{E_2}{j_1} = \left[R_0 + \varepsilon_{\perp s} P_0 + \frac{\pi_{\Delta s}}{\lambda_{\perp s}}(S_0 + Q_0)\right] B +$$

$$M_s \left[R_1 - R_0 + \varepsilon_{\perp s}(P_1 - P_0) + \frac{\pi_{\perp s}}{\lambda_{\perp s}}(S_1 - S_0 + Q_1 - Q_0)\right]$$

$$- \left[S_0 B + (S_1 - S_0) M_s\right]\left[P_0 B + (P_1 - P_0) M_s\right]\left[Q_0 B + (Q_1 - Q_0) M_s\right] \qquad (4.68)$$

Cette expression contient des termes de degré 2 et 3 en B, introduits essentiellement par le produit de la troisième ligne. Or, tous mes résultats

expérimentaux montrent que la courbe $\frac{E_2}{j_1} = f(B)$ est, aux erreurs d'expériences près, parfaitement linéaire au-dessous de la saturation. Il faut donc conclure que les termes du second et du troisième degré en B sont négligeables.

Le développement du produit de la troisième ligne de (4.68) contient aussi un terme en $M_s^2 B$ et un terme constant en M_s^3. Mais ces termes sont du même ordre de grandeur que les termes du second et du troisième degré en B comme on peut le vérifier, tout au moins dans le nickel massif, en utilisant les valeurs tabulées de S_1, P_1, Q_1 |11| et en évaluant S_0 P_0 Q_0 à partir des travaux de Busch et al |3|, M_s et B étant tous deux de l'ordre de 0,6 à 1T.

Ainsi on peut admettre que l'équation de la droite représentant $\frac{E_2}{j_1} = f(B)$ au-dessus de la saturation se ramène aux deux premières lignes de (4.68).

Mais, comme tous les métaux, le nickel a une grande conductivité thermique λ de telle sorte que les termes en $\frac{\pi}{\lambda}$ des relations (4.67) et (4.68) sont très petits et peuvent être négligés. Il reste le terme en εP dû à l'effet Ettingshausen. Une évaluation numérique pour le nickel massif montre que la correction due à ce terme n'excède pas 2 % de la tension de Hall |5| : erreur qui reste dans les limites des erreurs de mesure. Nous pourrons donc négliger aussi ce terme.

Remarquons que si les effets Ettingshausen-Nernst et Righi-Leduc sont négligeables pour un échantillon massif, ils le sont à fortiori dans un film mince,puisqu'il résulte des travaux théoriques de Blatt |2| que les coefficients S et Q diminuent avec l'épaisseur lorsque celle-ci est inférieure au libre parcours moyen des porteurs de charges électriques.

D'autre part, dans mes expériences, la condition d'adiabatisme $\vec{q} = 0$ n'est que partiellement remplie. En effet, le générateur électrique qui alimente le film et le voltmètre qui mesure la tension de Hall sont situés à l'extérieur de l'enceinte à vide si bien que l'échantillon est relié à l'extérieur par des fils conducteurs qui peuvent évacuer, au moins partiellement, la chaleur créée dans l'échantillon. Ceci, compte tenu de la disposition des électrodes (figure 4.5), a pour effet de diminuer l'intensité de G_1 et G_2 et par suite de réduire l'importance des effets thermogalvanomagnétiques.

III.2 - *Le dispositif expérimental*

La disposition des échantillons qui ont servi à étudier l'effet Hall est représentée sur la figure 4.5.

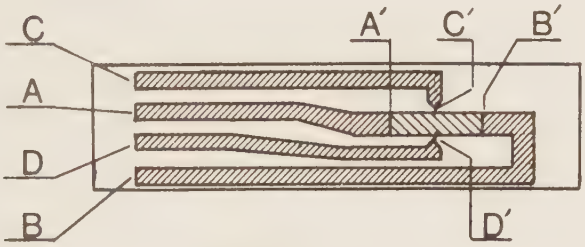


FIGURE 4.5

Si les amenées de courant AA', BB' et les sondes de Hall CC', DD' ne sont pas constituées avec le même matériau que l'échantillon A'B', les contacts en A'B'C'D' introduisent un certain nombre de phénomènes parasites. En effet, lors du passage du courant j_1 l'une des jonctions A' ou B' va s'échauffer par effet Peltier alors que l'autre va se refroidir. Il en résulte dans l'échantillon, un gradient thermique longitudinal qui change de sens avec le courant et qui, par conséquent, s'ajoute au gradient dû à l'effet Nernst ; ce qui peut fausser les conclusions du paragraphe précédent.

Cet effet sera absolument négligeable dans le circuit de Hall puisque le courant qui y circule est quasiment nul.

D'autre part, chaque contact se comporte comme une soudure de thermocouple et si la température n'est pas parfaitement uniforme il va en résulter des f. e. m. parasites non négligeables.

Enfin, si les contacts ne sont pas parfaits, il va apparaître des f. e. m. de contact et des résistances de contact.

En fait, ces deux dernières catégories de phénomènes parasites sont sans importance dans le circuit d'alimentation de la lame puisqu'on mesure le courant qui y circule avec une bonne précision mais ils peuvent modifier dans des proportions non négligeables la tension mesurée entre les sondes de Hall.

Pour éliminer totalement ces sources d'erreurs, j'ai utilisé le même nickel de haute pureté pour préparer le film à étudier et les électrodes AA', BB', CC', DD'. L'épaisseur (5 000 à 6 000 Å) des électrodes étant au moins cinq fois celle de l'échantillon le plus épais, leur résistance et leur contribution

à la tension de Hall sont très faibles par rapport à celles du film et ne modifient pratiquement pas la relation entre les phénomènes étudiés et l'épaisseur du film.

Cependant, pour des raisons que j'ai déjà indiquées (cf. § III.3 du chapitre I), j'ai dû reprendre les contacts en A, B, C, D avec des fils de platine. Il existait donc dans mes films un gradient thermique provenant de l'effet Peltier en A et B. Pour le réduire au minimum, j'ai toujours choisi l'intensité de courant la plus faible qui donnait un effet Hall appréciable soit, au maximum, 1 mA. D'autre part, la longueur de nickel qui sépare A et B est environ 8 fois celle du film ce qui divise par 8 le gradient qui existerait si les contacts de platine étaient pris directement en A' et B'. Une évaluation numérique montre que dans ce cas, le gradient thermique ne peut dépasser 0,1°/cm ce qui est inférieur à celui provenant de l'effet Nernst.

L'effet thermoélectrique en C et D est pratiquement nul étant donné que les soudures C et D sont très voisines et de ce fait à la même température.

Quant aux f. e. m. de contact éventuelles en C et D elles sont probablement très faibles et de toute manière elles se compensent.

En règle générale, je me suis efforcé de construire les circuits de manière que les f. e. m. parasites provenant des soudures entre métaux différents se compensent. Par exemple : le circuit de mesure de la tension de Hall peut être séparé en deux moitiés équivalentes, chacune reliant une sonde de Hall à une borne d'entrée du voltmètre ; j'ai introduit dans chaque moitié les mêmes soudures en plaçant à chaque fois les deux soudures identiques (une dans chaque moitié de circuit) aussi près que possible l'une de l'autre afin qu'elles soient à la même température.

Etant donné que les amenées de courant ont une résistance beaucoup plus faible que le film, elles agissent comme un court-circuit sur les sondes de Hall si la plaque n'est pas très longue par rapport à sa largeur. Cet effet a fait l'objet de calculs |10||6||19| et de mesures |4||14|. Il en résulte qu'il devient négligeable si le rapport longueur sur largeur est supérieur ou égal à 4. C'est pourquoi j'ai adopté les dimensions suivantes pour mes films : longueur 12 mm
largeur 3 mm.

En principe, les contacts de Hall en C' et D' doivent être ponctuels. Dans mes mesures, leur largeur était de l'ordre de 0,1 mm ce qui ne doit pas perturber les résultats |21|.

Une dernière cause d'erreur, la plus importante, provient de l'impossibilité pratique de placer les sondes C' et D' exactement sur la même équipotentielle. En effet si, en l'absence de champ magnétique, il existe déjà, entre les sondes, une d. d. p. due à la chute ohmique à travers l'échantillon, cette différence s'ajoutera pendant les mesures, à la d. d. p. de Hall, rendant impossible une mesure précise de cette dernière.

Pour éliminer cette tension résiduelle, on utilise un montage potentiométrique qui permet de compenser la d. d. p. existant entre les sondes en l'absence de champ magnétique (cf. figure 1.5)? Mais, du fait de la magnétorésistance, cette compensation n'est valable que dans les faibles champs. Cependant, la tension résiduelle qui subsiste dans les champs élevés ou moyens est une fonction paire de l'induction et on peut l'éliminer en conduisant les mesures de façon adéquate.

III.3 - *Mode opératoire*

Soit V_2 (I, B) la tension mesurée entre les sondes de Hall pour un certain sens du courant et de l'induction, par exemple, le sens positif des axes ox_1 et ox_3 de la figure 4.1.

Compte tenu de toutes les précautions prises, cette tension est la somme de la tension de Hall, fonction impaire du courant et de l'induction, d'une fonction paire de l'induction due notamment à la tension résiduelle liée à la magnétorésistance et de fonctions impaires de l'induction, mais indépendantes du courant dues, par exemple, à l'effet Ettingshausen-Nernst, à l'effet Righi-Leduc et à l'effet Seebeck de gradients thermiques provenant de l'homogénéité imparfaite du chauffage.

Un calcul élémentaire montre alors qu'on obtient la tension de Hall en faisant la moyenne des quatre valeurs de V_2 correspondant aux deux sens possibles de $\vec{B}$ et $\vec{I}$.

$$V_H = \frac{1}{4}\left[V_2(I,B) + V_2(-I,-B) - V_2(-I,B) - V_2(I,-B)\right] \tag{4.69}$$

Cette façon de procéder permet d'éliminer toutes les f. e. m. parasites qui ne sont pas des fonctions impaires de l'induction et du courant. Elle présente l'inconvénient d'être longue, c'est pourquoi, en général, pour limiter les effets d'une dérive éventuelle en température, on fixe les valeurs de B et de I et par un jeu d'inverseurs (cf. chapitre I), on mesure immédiatement les quatre

valeurs de V_2. Cette méthode n'est pas utilisable dans les ferromagnétiques où, du fait de l'hystérésis, le renversement de l'aimantation s'accompagne d'une dissipation d'énergie qui va justement à l'encontre du but recherché. J'ai donc pour chaque lame tracé les quatre courbes qui représentent les quatre termes du second membre de (4.69) et c'est à partir de ces courbes que j'ai, pour chaque valeur de B, I étant constant, calculé la moyenne (4.69).

Chapitre V

Effet Hall
Résultats expérimentaux

I - ALLURE GENERALE DU PHENOMENE

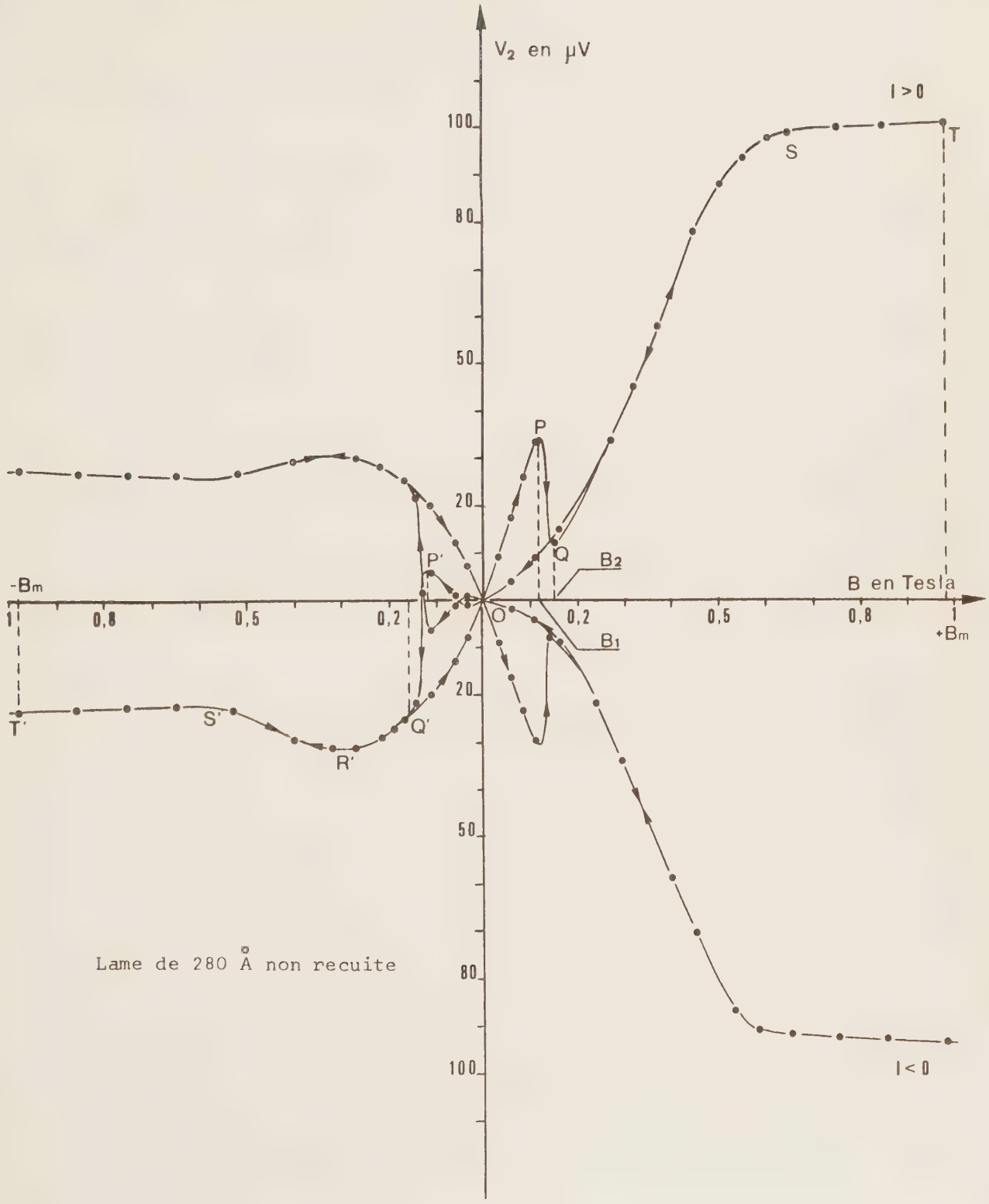
Très souvent, nous présenterons au lieu de la courbe $\rho_H = f(B)$, la courbe $V_H = f(B)$ obtenue pour un courant de 1 mA dans l'échantillon. Il résulte alors de la relation (4.5) que V_H pour un échantillon d'épaisseur donnée est rigoureusement proportionnelle à ρ_H.

Nous notons B positivement lorsque le vecteur induction traverse le support puis le dépôt, négativement dans l'autre cas. C'est-à-dire qu'avec les notations de la figure (4.1) le support se trouve dans le demi-espace où x_3 est négatif.

Toujours avec les notations de la figure (4.1), une tension transverse V_2 positive correspond à une résistivité de Hall négative, c'est-à-dire à un transport d'électricité par électrons dans l'échantillon. Notons tout de suite que c'est toujours le cas dans mes films de Nickel.

I.1 - *Lames non recuites*

J'ai représenté sur la figure 5.1 les quatre courbes relatives à la tension transverse V_2 pour une lame de 280 Å d'épaisseur, chaque courbe correspondant à l'un des deux sens du courant et à l'un des deux sens de l'induction. Elles ont été obtenues de la manière suivante : L'échantillon ayant été aimanté à saturation dans une direction perpendiculaire à son plan, on ramène le



Lame de 280 Å non recuite

FIGURE 5.1

champ appliqué à zéro et on compense la tension résiduelle due au défaut d'alignement des sondes. On obtient ainsi, en l'absence de tout champ appliqué une tension V_2 (o) = 0. On fait ensuite décrire à l'induction appliquée un cycle entre $- B_m$ et $+ B_m$ pour chaque sens du courant. Si on répète plusieurs fois ces cycles, on obtient les mêmes courbes aux erreurs d'expérience près.

Pour $I > 0$ par exemple, lorsque B croît de $- B_m$ à $+ B_m$ on suit le trajet T'S'R'Q'OPQST et lorsque B décroît de $+ B_m$ à $- B_m$ le trajet TSQOP'Q'R'S'T'. Pour $I < 0$ on obtient une courbe sensiblement symétrique par rapport à l'axe des abscisses.

L'allure générale de ces courbes qui est la même quelle que soit l'épaisseur du film, est notablement différente de celle de la courbe théorique de la figure 4.2 et elle appelle plusieurs remarques :

a) La symétrie par rapport à l'axe des abscisses montre que le changement de $+ I$ en $- I$ modifie peu la valeur de la tension transverse V_2 ce qui, joint au fait que les quatre courbes sont parfaitement linéaires dans les champs élevés (portions ST ou S'T' des courbes), illustre le paragraphe III.1 du chapitre IV et confirme que les f. e. m. parasites dont il a été question dans ce paragraphe ont peu d'importance tout au moins à la température ambiante.

b) On observe aussi que, contrairement à ce qui devrait être, les courbes ne sont pas symétriques par rapport à l'origine ; le changement de B en $- B$ modifie l'allure du phénomène.

Tout d'abord, la valeur absolue du rapport des maxima de la tension $\left|\frac{V_2\ (+ B_m)}{V_2\ (- B_m)}\right|$ est ici de l'ordre de 4. Pour d'autres lames, d'épaisseurs différentes, il est plus petit mais supérieur à 1, la valeur la plus grande correspondant toujours à $B > 0$.

Ensuite, on constate un comportement anormal des films dans les champs faibles : comportement que l'on peut, en principe, relier à l'hystérésis magnétique du fait que dans ce domaine, V_2 est, en gros, proportionnelle à l'aimantation. Effectivement, si B_1 désigne l'abscisse du point P et B_2 celle du point Q on constate que P' et Q' ont pour abscisses respectives $- B_1$ et $- B_2$. Les parties quasi-verticales PQ et

P'Q' des courbes correspondent bien à des valeurs opposées de l'induction appliquée ce qui est une caractéristique des cycles d'hystérésis. Mais alors que, lorsque B est négatif, le cycle est normal en ce sens qu'un accroissement du champ appliqué entraîne un accroissement de l'aimantation (nous raisonnons sur des valeurs absolues), il est inversé lorsque B est positif.

Ces courbes présentent encore d'autres anomalies telles que la portion Q'R'S' et la portion OP' qui fait apparaître un changement de sens de l'aimantation alors que le champ appliqué conserve toujours la même direction. Mais, ces deux dernières anomalies n'apparaissent pas pour toutes les lames.

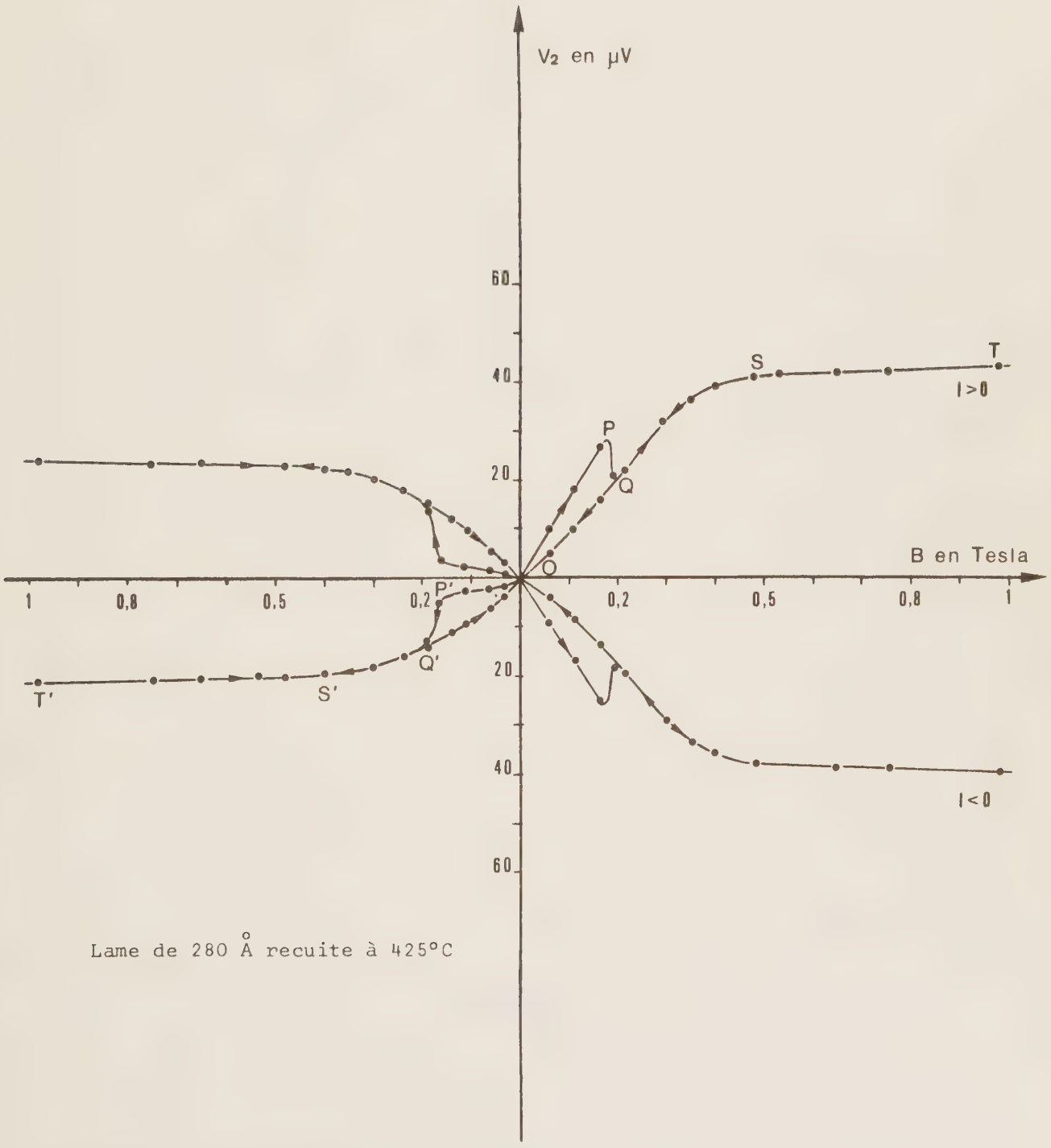
c) Signalons en outre que la variation importante de l'aimantation qui apparait en PQ et P'Q' s'accompagne d'un phénomène de trainage. C'est-à-dire que si l'on fait passer instantanément l'induction de la valeur B_1 à la valeur B_2 par exemple, la tension V_2 (B) va varier lentement de V_2 (B_1) à V_2 (B_2). Le temps qui s'écoule entre l'instant où B prend la valeur B_2 et celui où V_2 (B) atteint la valeur V_2 (B_2) correspondant à l'ordonnée du point Q peut être d'une vingtaine de minutes dans certaines lames.

I.2 - *Influence du recuit*

La figure 5.2 est relative au même échantillon que la figure 5.1. J'y ai reporté les courbes V_2 (B) pour un courant de 1 mA obtenues à la température ambiante après que le film ait subi un recuit, sans champ magnétique appliqué, de 12 heures à une température supérieure au point de Curie, plus précisément à 425°C. Un recuit de plus longue durée (24 heures) n'apporte que des modifications mineures aux résultats présentés ici.

On constate que l'allure générale des courbes n'est pas modifiée. Les principales anomalies signalées au paragraphe précédent subsistent ; en particulier le phénomène de trainage. Mais, leur ordre de grandeur est moins élevé.

On observe notamment une forte diminution de la tension mesurée lorsque B est positif alors qu'elle diminue relativement peu lorsque B est négatif. Il en résulte une amélioration du rapport $\frac{V_2\ (+\ B_m)}{V_2\ (-\ B_m)}$ qui se rapproche de 1.



Lame de 280 Å recuite à 425°C

FIGURE 5.2

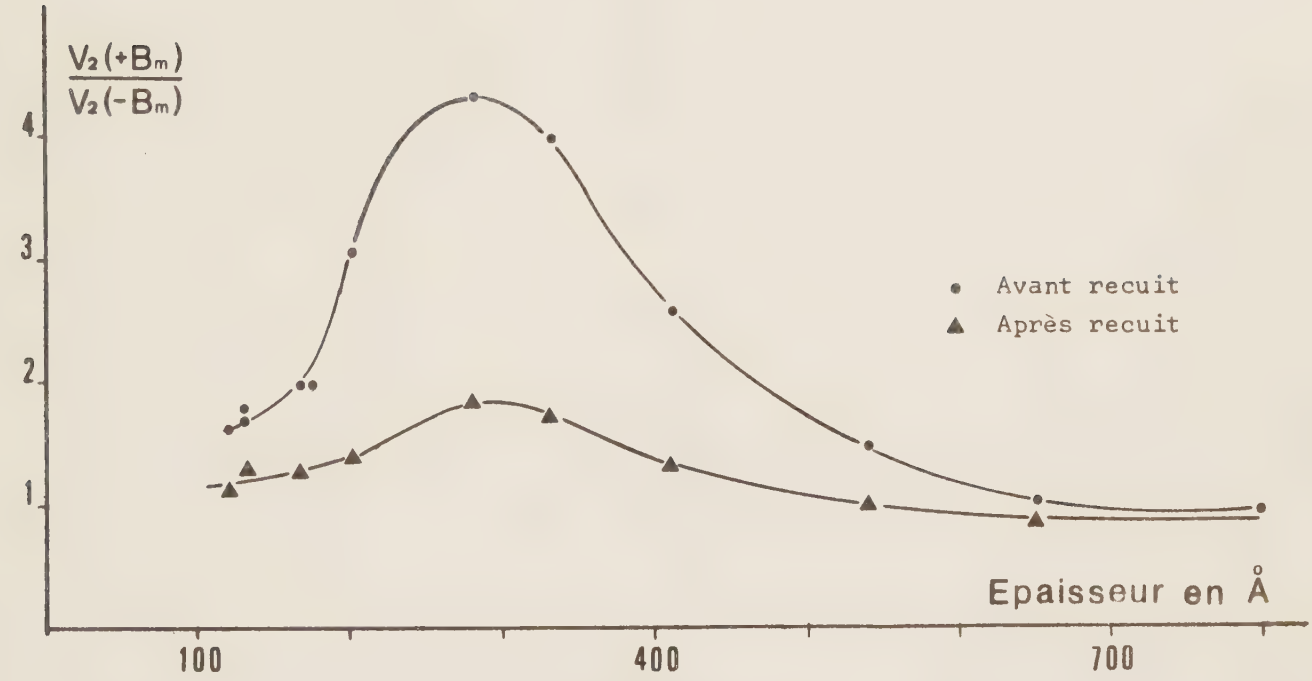


FIGURE 5.3

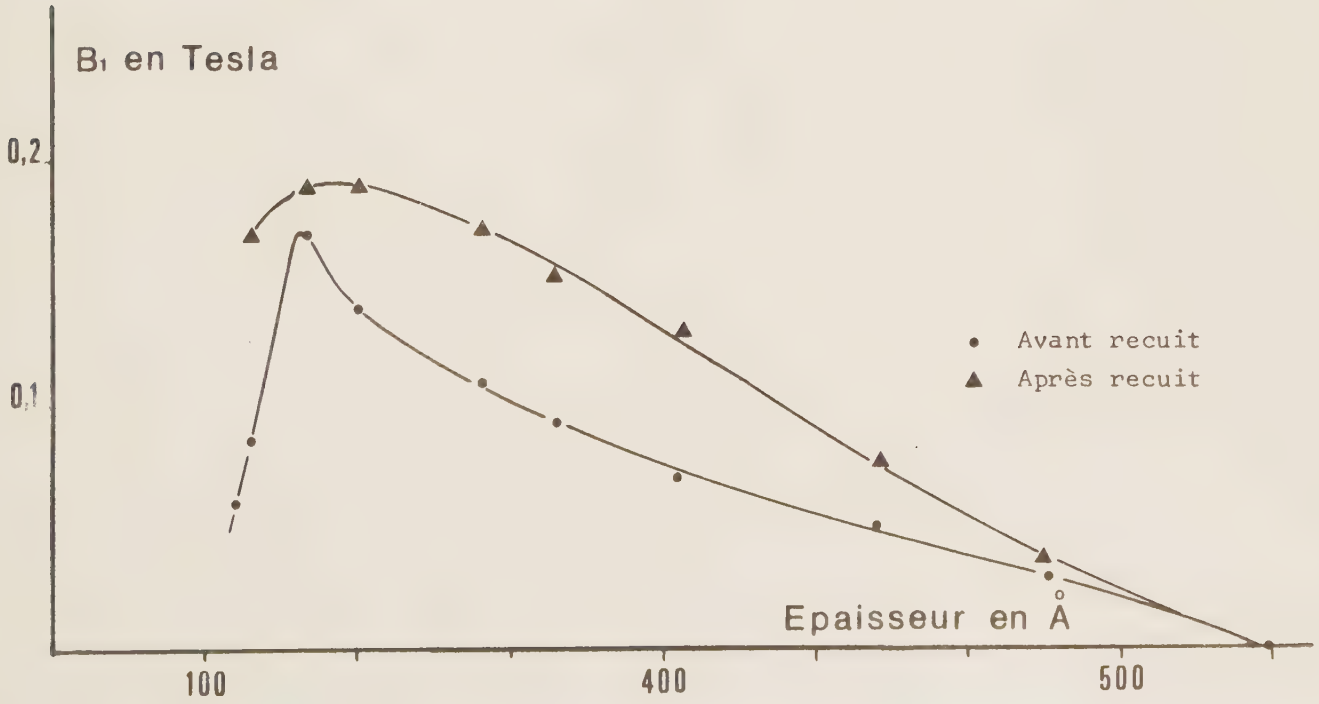


FIGURE 5.4

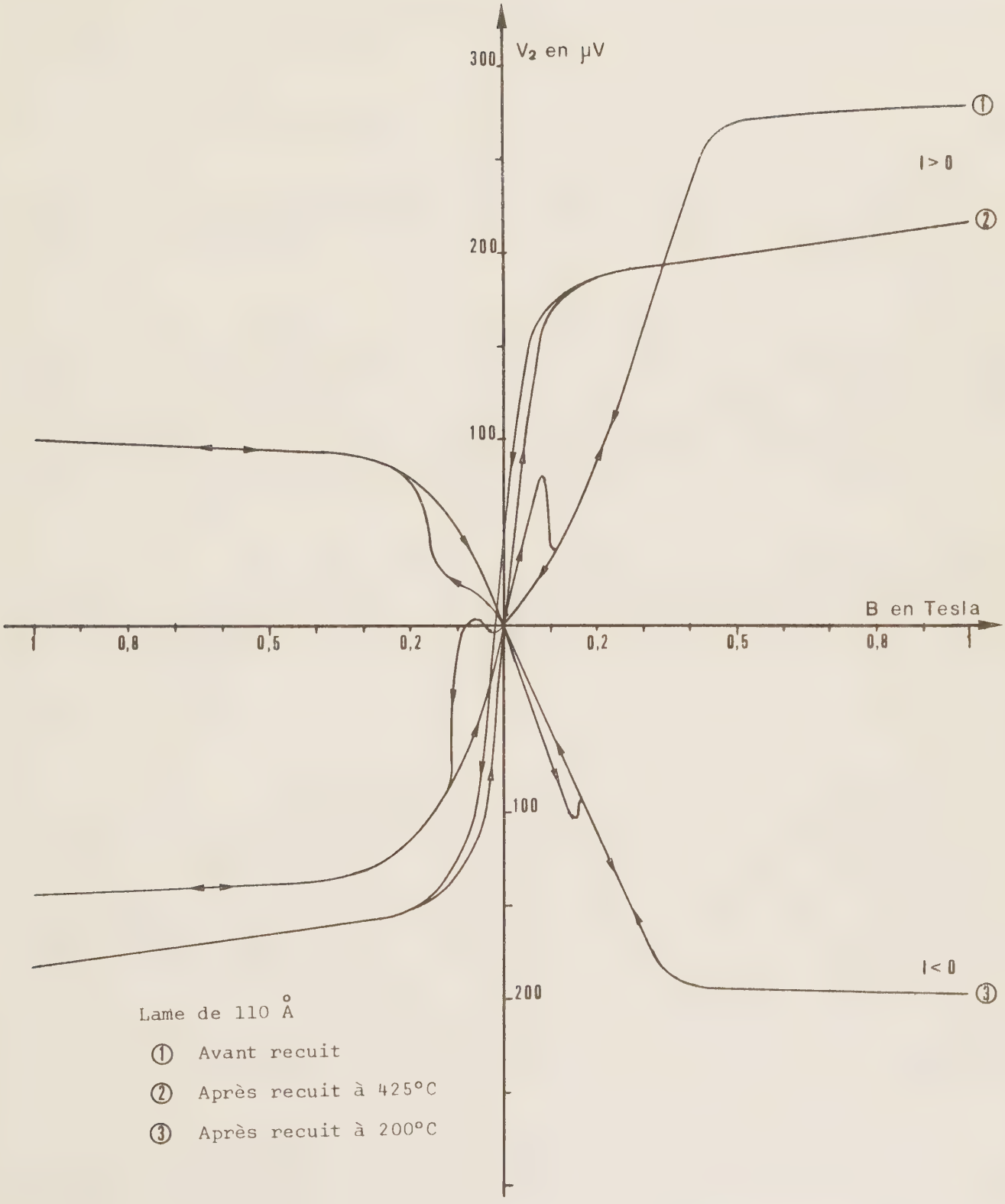

V₂ en µV
300
200
100
B en Tesla
1
0,8
0,5
0,2
0,2
0,5
0,8
1
100
200
I > 0
I < 0
①
②
③
Lame de 110 Å
① Avant recuit
② Après recuit à 425°C
③ Après recuit à 200°C

FIGURE 5.5

D'autre part, le recuit entraîne systématiquement une augmentation de l'abscisse B_1 du point P ainsi qu'une diminution de celle du point S.

I.3 - *Influence de l'épaisseur du film*

J'ai déjà signalé que l'allure générale des courbes V_2 (B) est la même quelle que soit l'épaisseur du film sauf pour les films très minces. Mais, l'ordre de grandeur des anomalies observées varie avec l'épaisseur.

Sur la figure 5.3, j'ai porté la valeur du rapport $\left|\frac{V_2\ (+\ B_m)}{V_2\ (-\ B_m)}\right|$ pour I positif et égal à 1 mA, en fonction de l'épaisseur, avant et après recuit et sur la figure 5.4, l'abscisse B du point P également en fonction de l'épaisseur, avant et après recuit. On peut constater que les anomalies, faibles pour les lames épaisses (on ne constate aucune anomalie importante pour une lame de 800 Å), deviennent plus importantes lorsque l'épaisseur diminue et qu'elles s'atténuent ensuite lorsque l'épaisseur est inférieure à 200 Å.

En ce qui concerne la différence $V_2 (B_1) - V_2 (B_2)$ des ordonnées des points P et Q et la durée du phénomène de trainage, il semble également y avoir un maximum vers 200 Å ou 300 Å mais les résultats sont très dispersés et il n'est pas possible de tracer une courbe.

I.4 - *Cas des lames très minces*

J'ai interrompu les courbes des figures 5.3 et 5.4 vers les faibles épaisseurs à 130 Å car, pour les lames plus minces, l'aspect de la courbe V_2 (B) est complètement modifié par le recuit ainsi que le montre la figure 5.5 sur laquelle j'ai reporté les courbes V_2 (B) pour I = + 1 mA relatives à une lame de 110 Å, avant et après recuit. Avant recuit, la courbe ① a même allure que celle de la figure 5.1 mais après recuit (courbe ②) elle présente l'aspect habituel d'un cycle d'hystérésis lorsque le champ magnétique est appliqué perpendiculairement à l'axe facile, c'est-à-dire l'aspect normal pour un échantillon plat soumis à un champ perpendiculaire à son plan. On remarque cependant la faible valeur de l'aimantation à saturation et la dissymétrie par rapport à l'origine.

Notons qu'après recuit à 200°C seulement, la courbe obtenue, représentée en ③ pour I = - 1 mA sur la figure 5.5 est exactement semblable à celle de la figure 5.2. Nous verrons que ceci confirme l'hypothèse selon laquelle un recuit à température élevée donne aux lames très minces une structure granulaire.

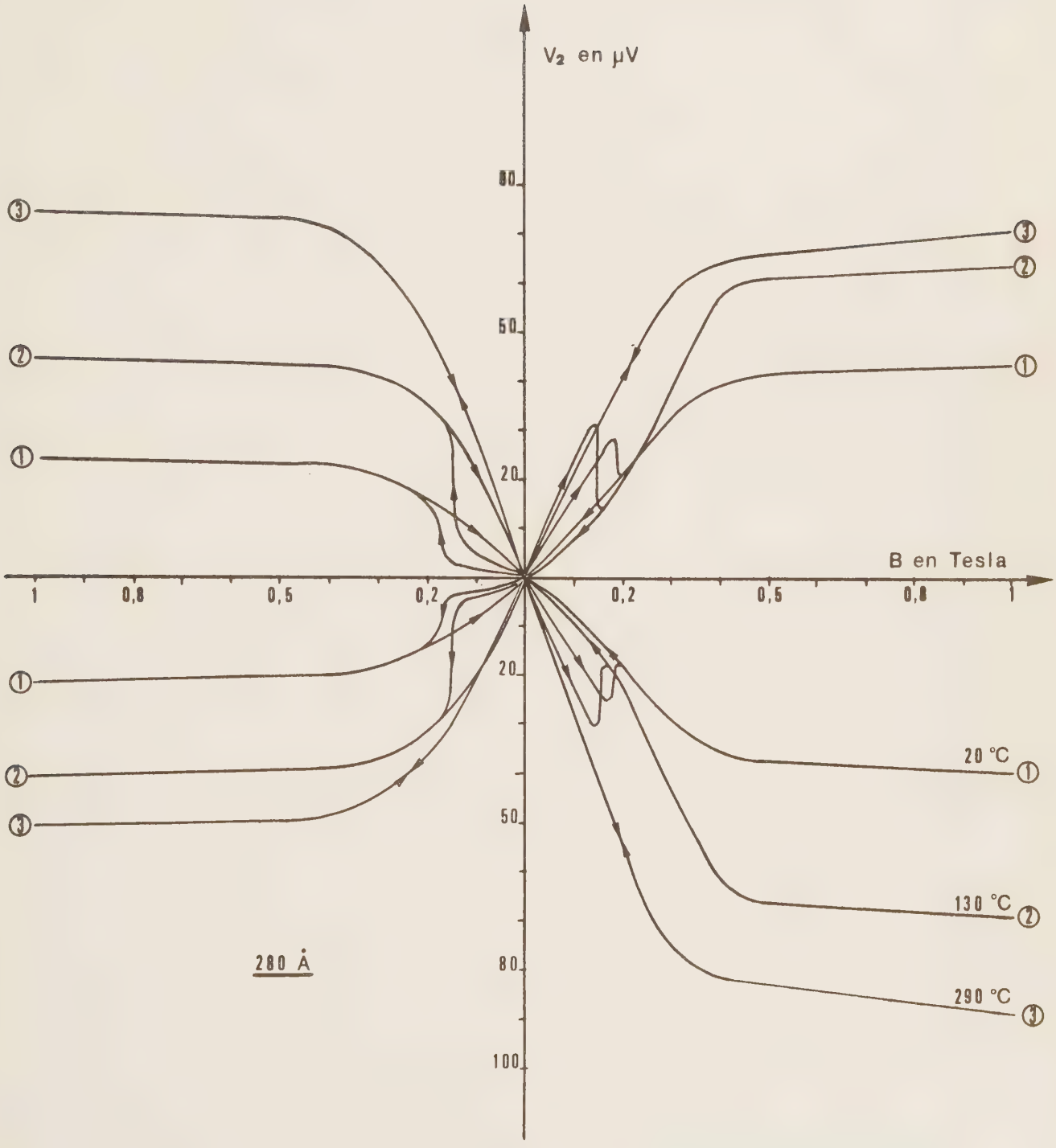

V₂ en µV
80
50
20
B en Tesla
1
0,8
0,5
0,2
0,2
0,5
0,8
1
20
50
80
100
20 °C
130 °C
290 °C
280 Å

FIGURE 5.6

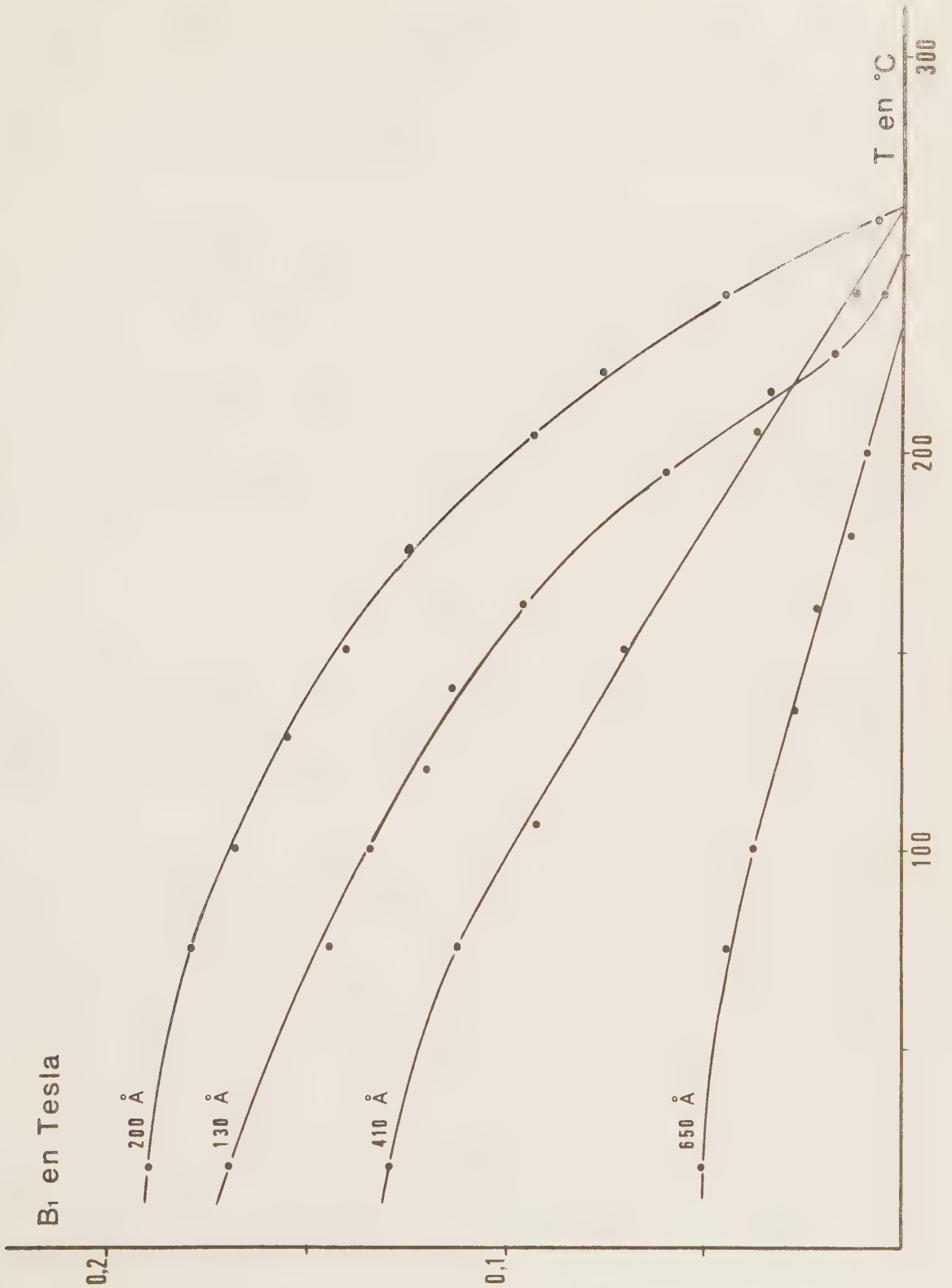


FIGURE 5.7

Lorsque l'épaisseur descend en dessous de 100 Å, le comportement anormal observé dans les champs faibles disparait totalement même si la lame n'a pas été recuite. On obtient des courbes V_2 (B) à peu près symétriques par rapport à l'origine, sans phénomène d'hystérésis. La tension V_2 (+ B_m) augmente lorsque l'épaisseur diminue et atteint un maximum vers 50 Å. En dessous de cette épaisseur, la tension mesurée diminue rapidement avec l'épaisseur.

Un recuit à 425°C diminue la tension mesurée et fait apparaître pour les lames d'épaisseurs supérieures à 80 Å environ un phénomène d'hystérésis analogue à celui observé après recuit sur une lame de 110 Å (figure 5.5). Il augmente également dans de grandes proportions la pente de la droite à saturation.

Les lames d'épaisseur inférieure à 80 Å voient leur résistance électrique augmenter sous l'effet du recuit de plusieurs ordres de grandeur, la résistance devenant pratiquement infinie pour des lames de 50 Å d'épaisseur environ (cf. chapitre II). En même temps, la tension transverse mesurée diminue rapidement.

I.5 - *Influence de la température*

La figure 5.6 concerne toujours le même film d'épaisseur 280 Å après recuit à 425°C. On y trouve les courbes V_2 (B) pour I = ± 1 mA et pour trois températures différentes : 20°C (courbe ① identique à celle de la figure 5.2) 130°C (courbe ②) et 290°C (courbe ③).

On constate qu'à 290°C, le phénomène d'hystérésis dans les champs faibles a complètement disparu alors qu'à 130°C, il existe encore mais l'abscisse B_1 du point P a fortement diminué. Il est d'ailleurs possible de tracer une courbe représentant B_1 en fonction de la température pour chaque film ainsi que cela apparait sur la figure 5.7 sur laquelle on peut constater que, quelle que soit l'épaisseur du film, le phénomène d'hystérésis anormal dans les champs faibles disparait au voisinage de 250°C. Il va de soi que le phénomène de trainage qui existe lorsque B est voisin de B_1 disparait également à 250°C.

Sur la figure 5.6 on observe, à la température ambiante, que les courbes ① sont sensiblement symétriques par rapport à l'axe des abscisses mais qu'il n'en est plus ainsi lorsque la température s'élève. On peut attribuer ceci au fait que le chauffage du film n'est pas parfaitement uniforme. Il existe des gradients thermiques dans le film qui créent des tensions parasites indépendantes du

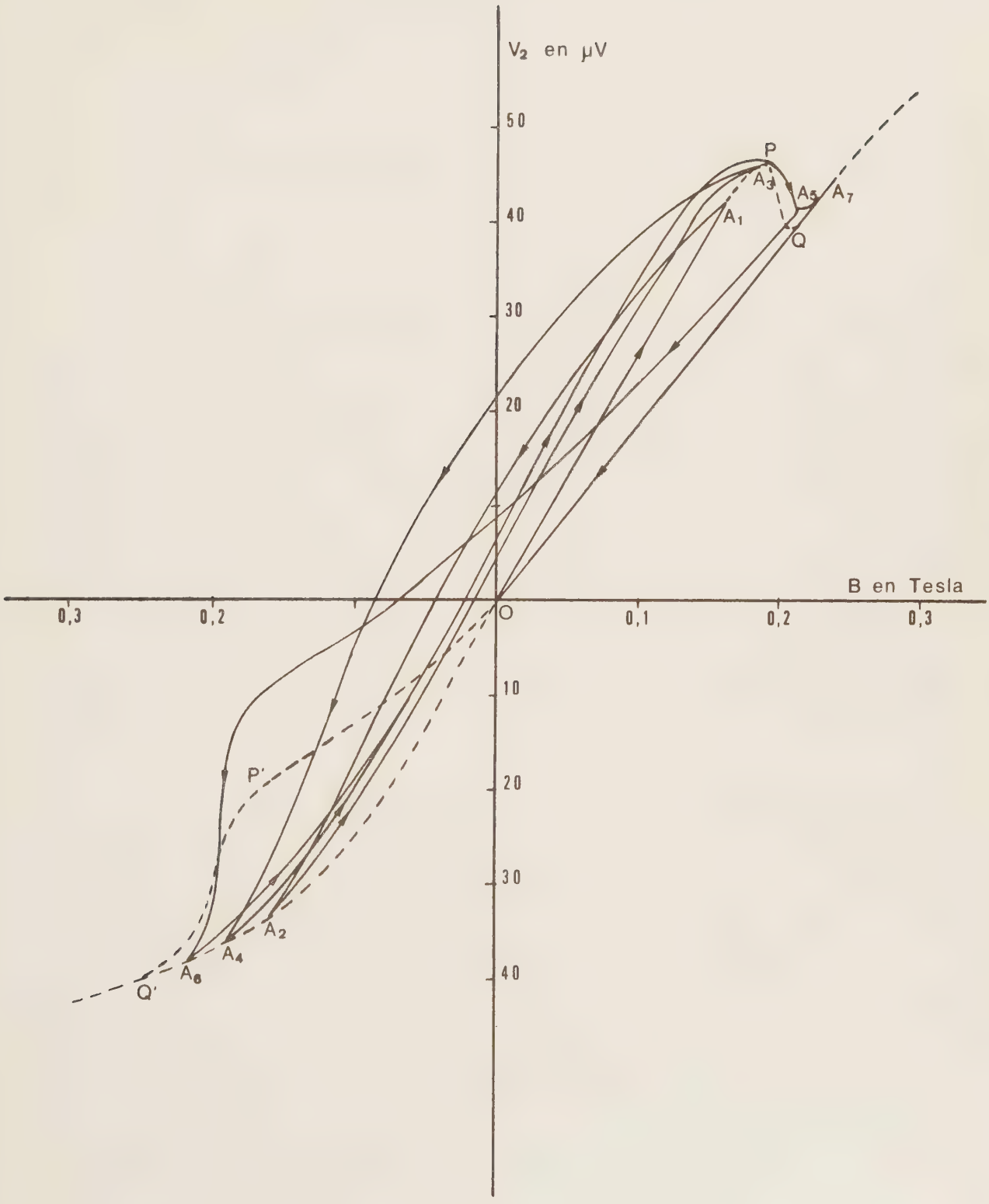

V2 en μV
50
40
30
20
10
20
30
40
B en Tesla
0,3
0,2
0,1
O
0,1
0,2
0,3
P
A3
A5
A7
A1
Q
P'
A2
A4
A6
Q'

FIGURE 5.8

courant. Il en résulte qu'on ne pourra étudier l'évolution de la tension de Hall avec la température qu'en procédant de la manière indiquée au paragraphe III.3 du chapitre IV.

II - *ETUDE QUALITATIVE DES COURBES V_2 (B) DANS LES CHAMPS FAIBLES*

II.1 - *Résultats expérimentaux*

Il résulte des paragraphes précédents que les caractéristiques des courbes V_2 (B) dans les champs faibles sont liées aux propriétés ferromagnétiques des films. Les processus d'aimantation sont nombreux et complexes aussi nous bornerons nous à une étude qualitative des phénomènes observés. Puisque ces derniers conservent la même allure que la lame ait été recuite ou non et quelle que soit son épaisseur pourvu qu'elle dépasse 130 Å, je me limiterai dans ce paragraphe à présenter les résultats de l'étude, à la température ambiante, d'un film d'épaisseur 200 Å ayant subi un recuit à 425°C. J'ai choisi un film de 200 Å uniquement parce que les tensions mesurées sont relativement importantes, ce qui facilite l'observation des phénomènes.

On procède de la manière suivante : L'échantillon ayant été aimanté à saturation par une induction négative $-B_m$ par exemple, on ramène l'induction appliquée à zéro et on compense la tension résiduelle de manière que V_2 (o) = 0.

Si on soumet à nouveau l'échantillon à une induction négative, le point représentatif A de coordonnées V_2 (B) et B décrit de façon réversible la courbe OQ'S'T' (figure 5.2). Mais, si, partant de B = 0, on lui fait décrire des cycles d'amplitudes croissantes en commençant par une induction positive on obtient les résultats de la figure 5.8 (pour I = + 1 mA). Partant de l'origine le point A décrit d'abord la branche OA_1 portée par OP. Arrivé en A_1 on fait décroître l'induction jusqu'à ce que le point A soit arrivé en A_2 d'abscisse égale et opposée à celle de A_1. Tant que l'abscisse de A_1 est petite (inférieure à 0,06 T) la branche $A_1 A_2$ est toujours portée par Q'OP, c'est-à-dire qu'elle est réversible et passe par l'origine. (Ceci n'a pas été représenté sur la figure 5.8 où le cycle Q'OPQOP'Q' est représenté en pointillé). Lorsque l'abscisse de A_1 devient supérieure à 0,06 T la branche $A_1 A_2$ ne passe plus par l'origine mais elle coupe l'axe OV_2 en un point d'ordonnée positive (figure 5.8).

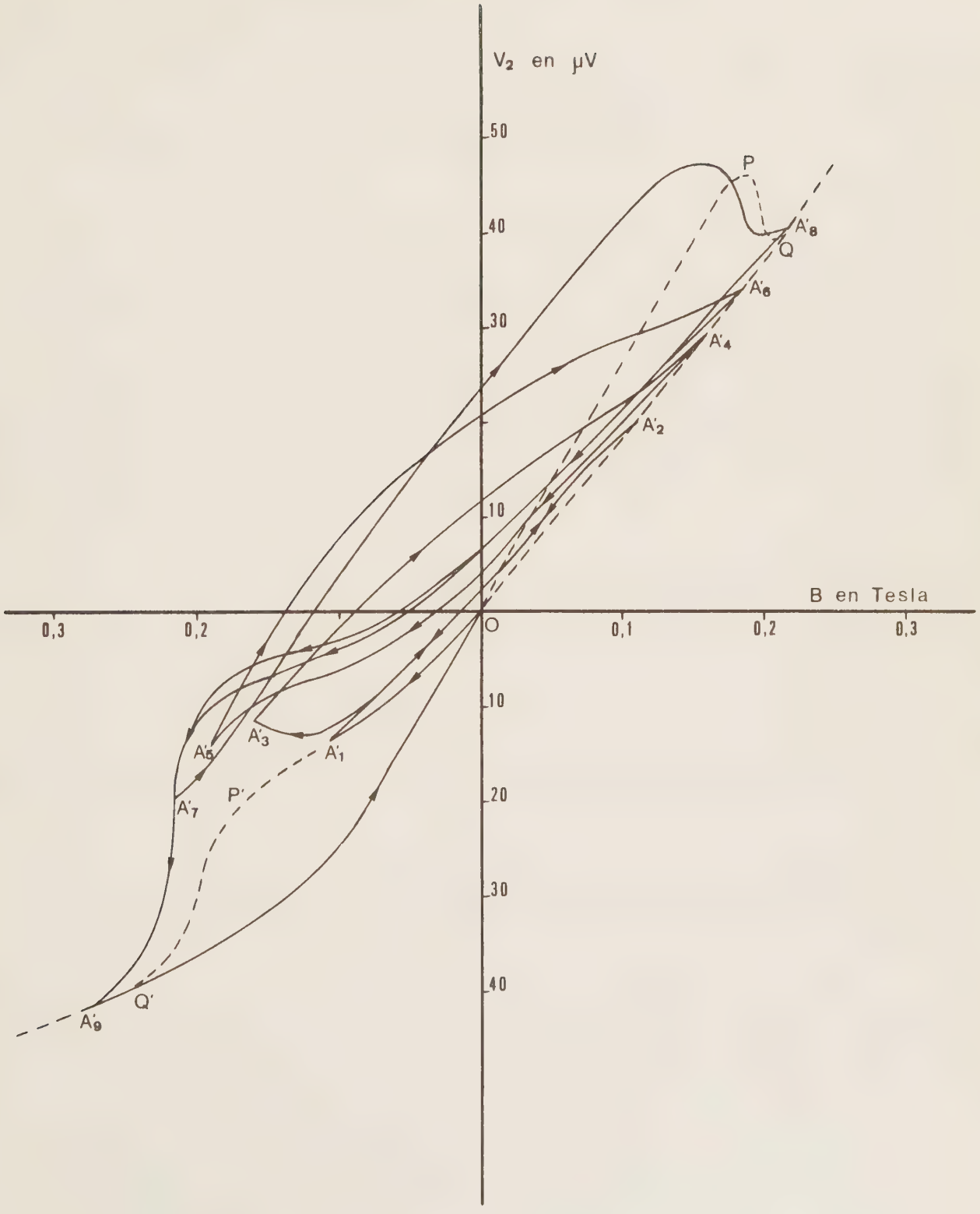

V₂ en μV
50
40
30
10
B en Tesla
0,3
0,2
O
0,1
0,2
0,3
10
20
30
40
P
A'8
Q
A'6
A'4
A'2
A'5
A'3
A'1
A'7
P'
Q'
A'9

FIGURE 5.9

En A_2 on inverse le sens de variation de B et on revient jusqu'en A_3 d'abscisse supérieure à celle de A_1 où l'on change à nouveau le sens de variation de B pour retourner en A_4 d'abscisse égale et opposée à celle de A_3 et ainsi de suite jusqu'à atteindre un point A_{2k+1} (ici A_7) d'abscisse supérieure à celle du point Q. En annulant l'induction, le point A revient alors exactement à l'origine en suivant la courbe QO qu'il décrirait si l'échantillon avait été aimanté à saturation par une induction $+ B_m$.

Si on continue à faire décroître B, le point A commence à décrire la branche OP' en pointillé sur la figure (5.8). Si en un point A'_1 d'abscisse inférieure en valeur absolue à celle de P' on change le sens de variation de l'induction, on amorce une nouvelle série de cycles, identiques à ceux que l'on peut obtenir en recommençant les expériences que je viens de décrire mais après avoir saturé l'échantillon à l'aide d'une induction positive $+ B_m$. Cette nouvelle série est représentée sur la figure 5.9, analogue à la figure 5.8. En particulier, tant que l'abscisse de A'_1 est inférieure à 0,06 T, le point représentatif A reste sur la courbe QOP' qu'il décrit de manière reversible avec l'induction. Dès que l'abscisse du point A'_{2k+1} est supérieure à celle de Q' (ici A'_9) le point représentatif décrit à nouveau la branche Q'O.

On obtient des courbes symétriques par rapport à l'axe des abscisses si au lieu de fixer le courant à + 1 mA on le fixe à - 1 mA.

II.2 - *Interprétation*

Il n'est pas question de procéder à une analyse détaillée des courbes des figures 5.8 et 5.9. Cependant, elles mettent en évidence :

a) Que les processus d'aimantation dans les champs faibles sont essentiellement irréversibles, ce qui implique une structure en domaines du film.

b) Que pour chaque valeur de l'induction comprise entre $- B_2$ et $+ B_2$ (B_2 est l'abscisse du point Q) il existe bien sur plusieurs configurations en domaines selon l'histoire magnétique de l'échantillon mais deux de ces configurations jouent un rôle particulier : celle que j'appellerai Configuration I ou configuration (+) car elle est obtenue en soumettant l'échantillon à une induction positive $+ B_m$ et celle que j'appellerai Configuration II ou configuration (-) car elle est obtenue en saturant l'échantillon à l'aide d'une induction négative.

En effet, reprenons les expériences relatives à la figure 5.8. L'échantillon est initialement dans la configuration II correspondant à la courbe Q'OP. Lorsqu'on le soumet à des inductions de faibles valeurs, le point représentatif décrit réversiblement (aux erreurs de mesure près) un segment de la courbe Q'OP et lorsqu'on le soumet à des inductions plus importantes, on remarque sur la figure 5.8 que les points A_2, A_4, A_6 se trouvent sur la courbe Q'OP. Celle-ci joue donc, tant que $B < B_2$, un rôle analogue à la courbe de première aimantation pour un échantillon massif.

On peut faire les mêmes observations en ce qui concerne la courbe QOP' et les points A'_2 A'_4 ... A'_8 lorsque l'échantillon avait initialement la configuration I (figure 5.9).

Remarquons que, pour passer de la configuration I à la configuration II et réciproquement, il n'est pas nécessaire de saturer le film ; il suffit de le soumettre à une induction B telle que $|B| > |B_2|$.

Les configurations I et II possèdent pour $B = 0$ la même aimantation rémanente $\vec{M}_r$ qui est toujours négative, c'est-à-dire dirigée du dépôt vers le support.

En effet, si on décale d'une quantité suffisante, une dizaine de microvolts pour les résultats présentés, l'origine des tensions vers les tensions négatives, les cycles des figures 5.8 et 5.9 présentent une allure moins anormale en ce sens que les branches montantes, c'est-à-dire celles relatives à une induction croissante, coupent toujours le demi-axe OV_2 positif alors que les branches décroissantes coupent le demi-axe OV_2 négatif.

Mais, le principal intérêt de cette hypothèse réside dans le fait qu'elle permet d'expliquer la dissymétrie des courbes V_2 (B) par rapport à l'origine, à la température ambiante (cf. figures 5.1 et 5.2).

Effectivement, s'il existe une aimantation rémanente, il résulte du paragraphe II.3 du chapitre IV que la tension de Hall proprement dite n'est pas nulle pour $B = 0$. Sa valeur V_{Hr} s'ajoute à la tension due au défaut d'alignement des sondes, pour créer la tension résiduelle que l'on compense pour obtenir V_2 (o) = 0. Ceci s'applique également aux phénomènes parasites liés à l'aimantation. Or, au dessous de la saturation, la tension transverse est principalement due aux effets "aimantation" si bien que la tension V_2 (B) que l'on mesure alors est en fait :

$$V_2 (B) = V_2 (M) - V_2 (M_r) \qquad (5.1)$$

$\vec{M}_r$ étant négative, selon nos conventions de signe $V_2 (M_r)$ sera négative si I est positif et positive dans le cas contraire, si bien que la tension $V_2 (+ B)$ sera toujours supérieure en valeur absolue à la tension $V_2 (- B)$.

Désignons par $\vec{M}$ l'aimantation du film soumis à un champ d'induction $+ B$ et par $\vec{M}'$ son aimantation, toujours négative, lorsqu'il est soumis à une induction égale et opposée, $- B$. Puisque M_r est négative, on aura nécessairement tant que la saturation ne sera pas atteinte :

$$|M'| > |M| \tag{5.2}$$

d'où :

$$|V_2 (M')| > |V_2 (M)| \tag{5.3}$$

La relation (5.1) montre alors qu'un point de la branche OQ' d'abscisse $- B$ sur la figure 5.2 par exemple, correspond à une aimantation supérieure en valeur absolue à celle à laquelle correspond le point d'abscisse égale et opposée $+ B$ de la branche OQ. Effectivement, la forme arrondie de la branche OQ' s'apparente davantage à celle de la branche QS qu'à celle de la branche OQ.

La condition $|M'| = |M|$ sera remplie lorsque le film sera aimanté à saturation. Si bien que deux points d'abscisses égales et opposées sur les branches ST et $S'T'$ de la figure 5.2 correspondent à un même état magnétique et sous réserve des considérations du paragraphe III du chapitre IV, les tensions $V_2 (+ B)$ et $V_2 (- B)$ devraient être égales et opposées si l'aimantation rémanente était nulle. On en déduit immédiatement :

$$V_2 (M_r) = - \frac{V_2 (+ B) + V_2 (- B)}{2} \tag{5.4}$$

avec $B > M_s$

Remarque Il n'est pas possible d'exclure à priori l'existence d'une contribution de l'effet galvanomagnétique plan (cf. § II.1 du chapitre IV) à $V_2 (B)$ en dessous de la saturation. Une telle contribution permettrait notamment d'interpréter la partie $Q'R'S'$ de la courbe représentant $V_2 (- B)$ avant recuit (cf. figure 5.1). En effet, la tension due à l'effet galvanomagnétique plan s'annule nécessairement lorsque l'échantillon est aimanté à saturation normalement à son plan et si, pour B négatif, elle s'ajoute en valeur absolue à la tension de Hall, on peut obtenir en dessous de la saturation une tension $V_2 (- B)$ supérieure à la tension mesurée au dessus de la saturation. L'analyse des résultats expérimentaux au chapitre VI permettra de montrer que cette hypothèse est peu vraisemblable pour les lames recuites.

III - L'EFFET HALL DES LAMES D'EPAISSEUR SUPERIEURE A 120 Å

III.1 - Détermination de V_H

Puisque $V_2 (M_r)$ ne change pas de signe avec l'aimantation, il ne sera pas nécessaire de déterminer sa valeur pour connaître la tension de Hall au dessus de la saturation. Il résulte du paragraphe précédent qu'elle sera éliminée des calculs si l'on fait la moyenne indiquée par la relation(4.69).

Au dessous de la saturation il ne sera pas possible de déterminer la valeur exacte de la tension de Hall en faisant la moyenne 4.69. En effet, pour que cette moyenne fournisse V_H il faudrait introduire dans 4.69 les quatre valeurs de $V_2 (I, B)$ relatives à un même état magnétique (même aimantation) de l'échantillon or, il résulte du paragraphe précédent qu'elles ne sont pas connues. Il est donc impossible de tracer la courbe $V_H = f (B)$ en dessous de la saturation. Mais, seule la tangente en $B = 0$ à cette courbe nous intéresse et, puisque les courbes $V_2 (I, B)$ sont continues en $B = 0$ pour chacune des deux configurations en domaines définies précédemment, j'ai pu obtenir les caractéristiques de l'effet Hall des films en procédant de la manière suivante : pour chaque film et pour chaque valeur de la température, je trace :

a) La droite représentant $V_H = f (B)$ au dessus de la saturation en utilisant la méthode du paragraphe III.3 du chapitre IV et la formule 4.69.

b) Les courbes $V_2 (I, B)$ pour $I = 1$ mA au voisinage de $B = 0$; plus précisément pour :

$$- 0{,}03 \text{ T} < B < 0{,}03 \text{ T}$$

Je peux alors tracer les tangentes en $B = 0$ à ces courbes et j'obtiens ainsi quatre droites : deux pour chaque configuration en domaines, l'une correspondant à I positif, l'autre à I négatif.

En faisant, pour chaque configuration, la moyenne des valeurs absolues des pentes des deux droites obtenues, j'obtiens la pente de la tangente en $B = 0$ à la courbe $V_H = f (B)$ pour la configuration considérée.

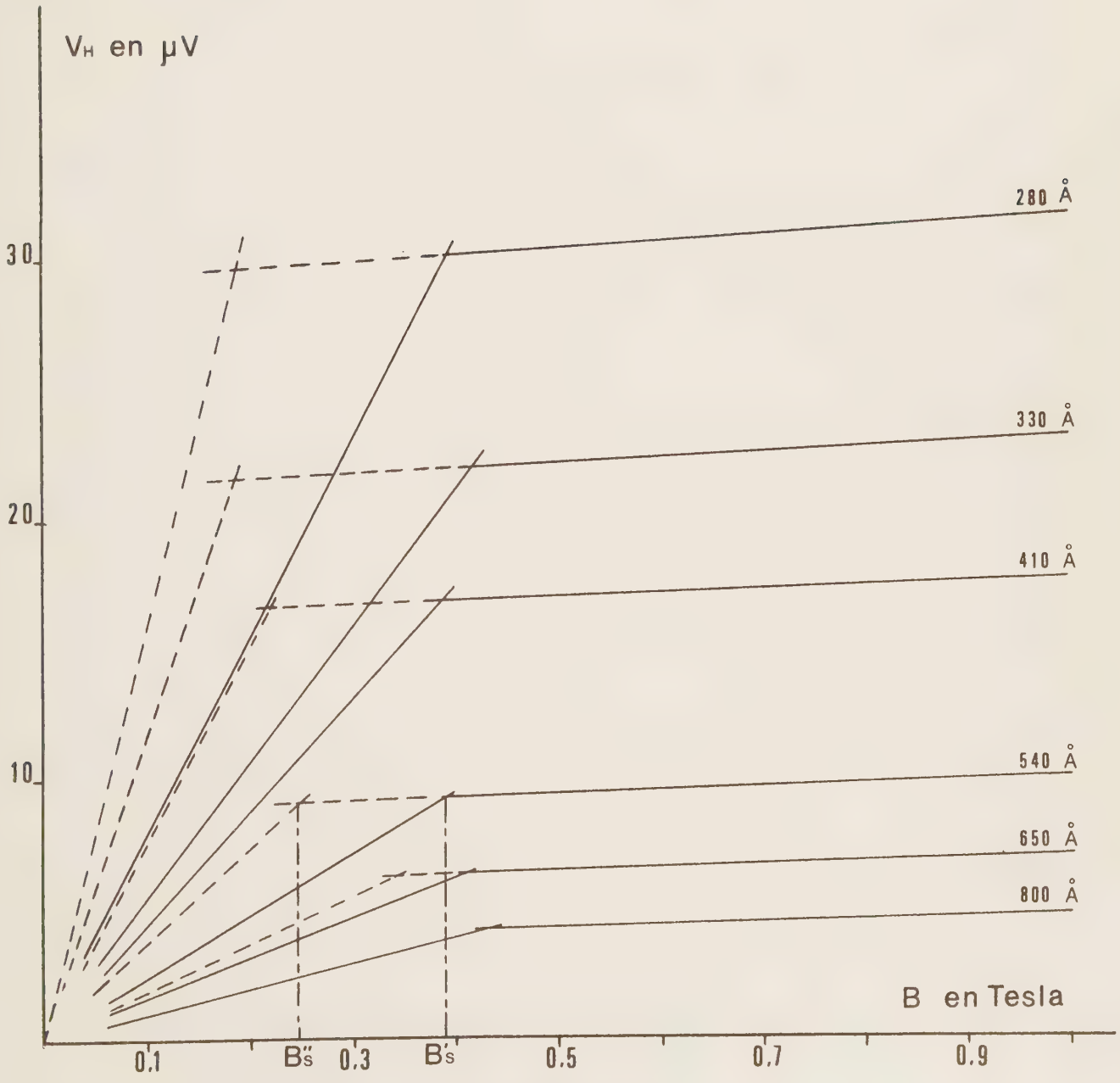

V_H en µV
30
20
10
280 Å
330 Å
410 Å
540 Å
650 Å
800 Å
B en Tesla
0.1
B''_s
0.3
B'_s
0.5
0.7
0.9

FIGURE 5.10

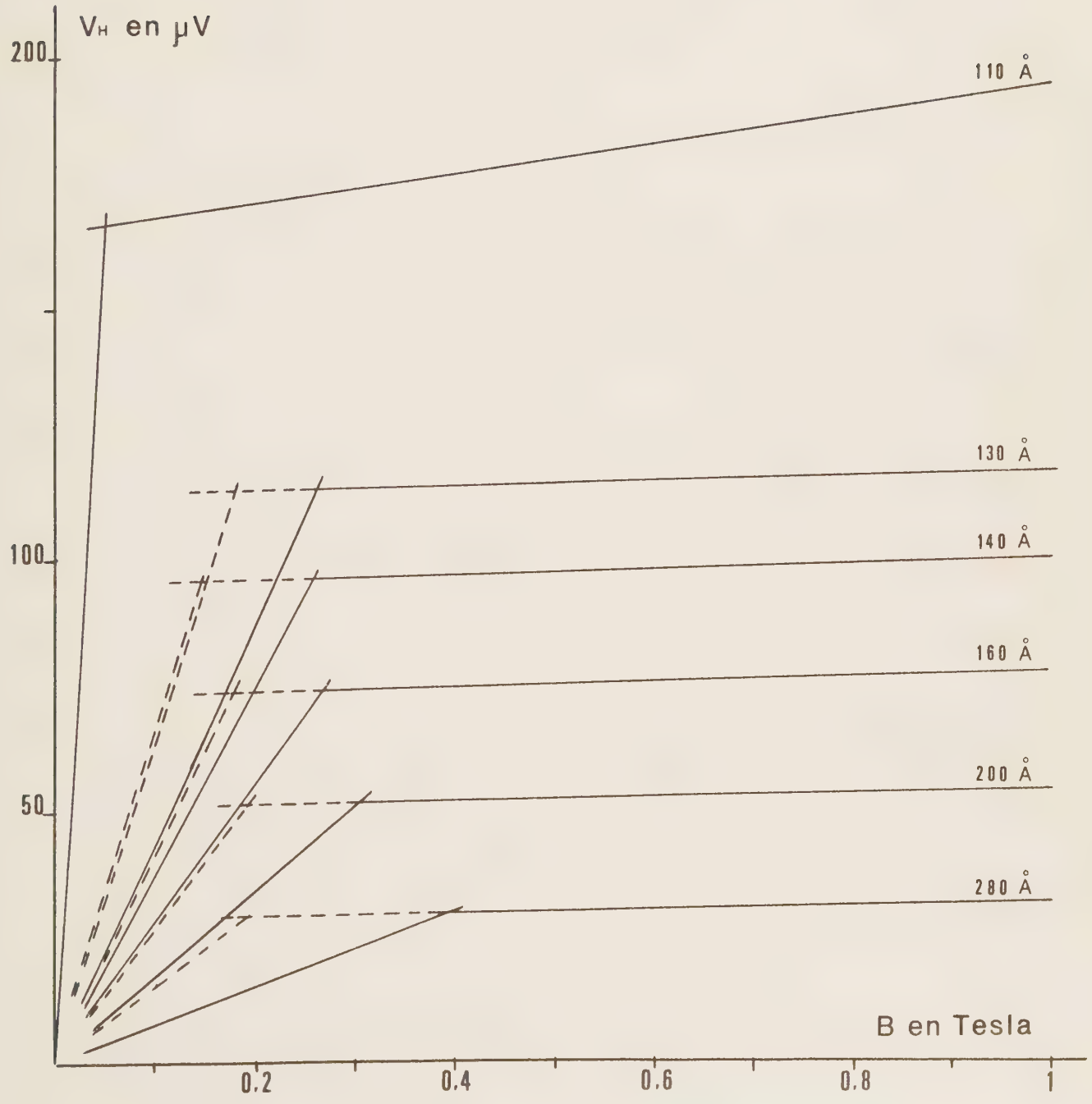

VH en µV
200
100
50
110 Å
130 Å
140 Å
160 Å
200 Å
280 Å
B en Tesla
0.2
0.4
0.6
0.8
1

FIGURE 5.11

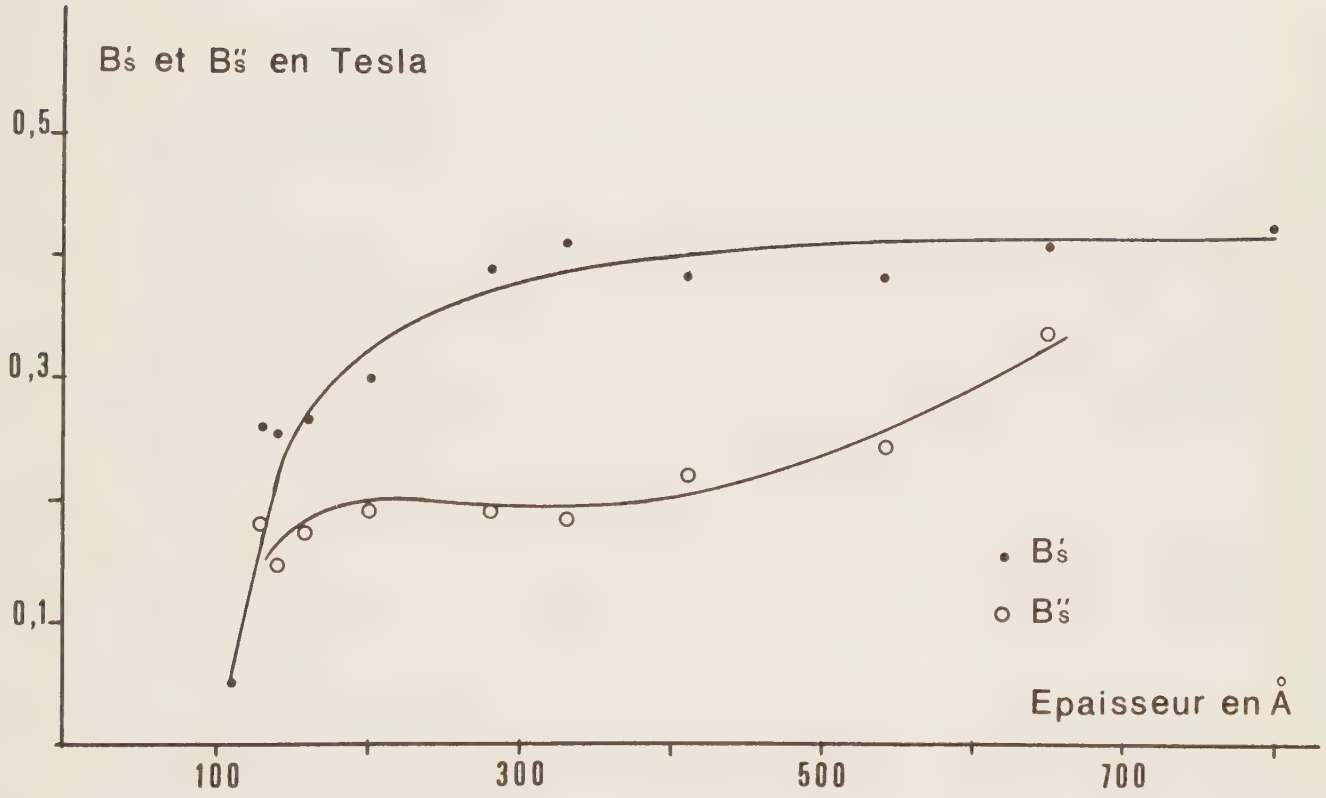


FIGURE 5.12

En fait, la tangente en $B = 0$ ainsi obtenue n'est pas la tangente à l'origine au sens du chapitre IV où j'ai appelé ainsi la tangente en $\vec{M} = 0$. Il s'agit ici de la tangente à la rémanence ($\vec{M} = \vec{M}_r$) mais j'ai déjà montré (cf. § II.4 du chapitre IV) que cela ne modifie en rien l'analyse du phénomène à condition d'introduire la susceptibilité différentielle à la rémanence et le facteur démagnétisant à la rémanence dans les relations qui lient la pente de la tangente aux coefficients de Hall.

III.2 - *Effet Hall à la température ambiante des lames recuites à 425°C*

J'obtiens ainsi pour chaque film et pour chaque valeur de la température trois droites qui caractérisent l'effet Hall en fonction de l'induction appliquée.

Elles sont représentées pour diverses épaisseurs sur les figures 5.10 et 5.11. Les deux droites qui passent par l'origine sont liées à l'effet "aimantation", celle en trait plein est relative à la configuration I, celle en pointillé à la configuration II. Elles coupent la droite représentant la tension de Hall au dessus de la saturation en deux points dont les abscisses respectives B'_s et B''_s sont liées à l'aimantation à saturation M_s du film considéré (cf. chapitre IV).

Il y a peu de choses à dire des figures 5.10 et 5.11 si ce n'est qu'elles montrent que la tension de Hall croît rapidement lorsque l'épaisseur diminue mais c'est un résultat bien connu.

Sur la figure 5.12, j'ai reporté les valeurs de B'_s et B''_s en fonction de l'épaisseur à la température ambiante. On observe que B'_s reste sensiblement constante et voisine de 0,4 Tesla tant que l'épaisseur est supérieure à 300 Å puis qu'elle décroît très rapidement lorsque l'épaisseur diminue. Nous verrons qu'il serait erroné d'en conclure que l'aimantation à saturation des films est très inférieure à celle du Nickel massif, de l'ordre de 0,6 T à la température ambiante, et qu'elle diminue avec l'épaisseur.

L'allure de la courbe représentant B''_s en fonction de l'épaisseur semble montrer que B''_s tend vers les mêmes valeurs que B'_s aux fortes et aux faibles épaisseurs. La configuration II apparait ainsi comme une caractéristique des films d'épaisseur comprise entre 100 Å et 800 Å.

La relation 4.5 qui lie V_H à la résistivité de Hall ρ_H permet, à partir des droites des figures 5.10 et 5.11 de déterminer également trois droites qui caractérisent la variation de ρ_H en fonction de l'induction.

La droite représentant $\rho_H = f(B)$ au dessus de la saturation dont la pente R'_0 et l'ordonnée à l'origine ρ'_{Hs} sont liées aux coefficients de Hall R_1 et R_0, à l'aimantation à saturation M_s et à la susceptibilité en champs intenses χ_s par les relations suivantes déduites de 4.49.

$$R'_0 = R_0 + (R_1 - R_0) \frac{\chi_s}{1 + \chi_s} \tag{5.5}$$

$$\rho'_{Hs} = (R_1 - R_0) \frac{M_s}{1 + \chi_s} \tag{5.6}$$

et les deux tangentes en $B = 0$ aux courbes $\rho_H = f(B)$ pour chaque configuration en domaines.

Nous appellerons χ' la susceptibilité à la rémanence de la configuration I, N' son facteur démagnétisant à la rémanence et R'_1 la pente de la tangente en $B = 0$ à la courbe $\rho_H = f(B)$. χ'', N'', R''_1 désignent les quantités correspondantes relatives à la configuration II. Ces diverses grandeurs sont liées aux coefficients de Hall R_1 et R_0 par les relations suivantes déduites de 4.55.

$$R'_1 = R_0 + (R_1 - R_0 \mu_0 N') \frac{\chi'}{1 + \mu_0 N' \chi'} \tag{5.7}$$

$$R''_1 = R_0 + (R_1 - R_0 \mu_0 N'') \frac{\chi''}{1 + \mu_0 N'' \chi''} \tag{5.8}$$

Quant aux inductions à saturation B'_s et B''_s ce sont, compte tenu de la rigoureuse proportionnalité entre V_H et ρ_H (cf. la relation 4.5), les abscisses des points d'intersection de la droite de pente R'_0 et d'ordonnée à l'origine ρ'_{Hs} avec les droites de pentes R'_1 et R''_1 par suite :

$$B'_s = \frac{R_1 - R_0}{R'_1 - R'_o} \frac{M_s}{1 + \chi_s} \tag{5.9}$$

$$B''_s = \frac{R_1 - R_0}{R''_1 - R'_0} \frac{M_s}{1 + \chi_s} \tag{5.10}$$

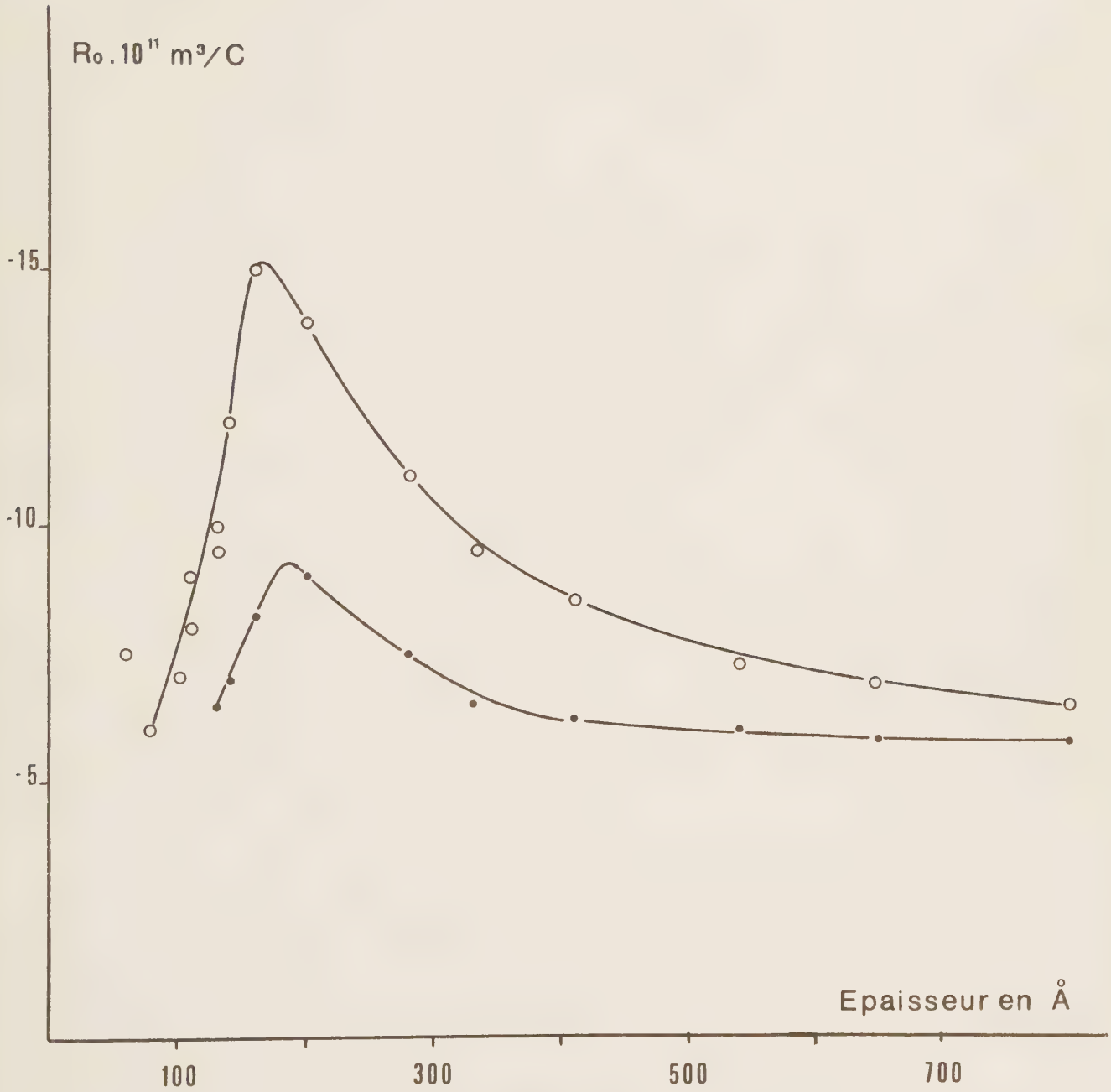


FIGURE 5.13

o Avant recuit • Après recuit à 425°C

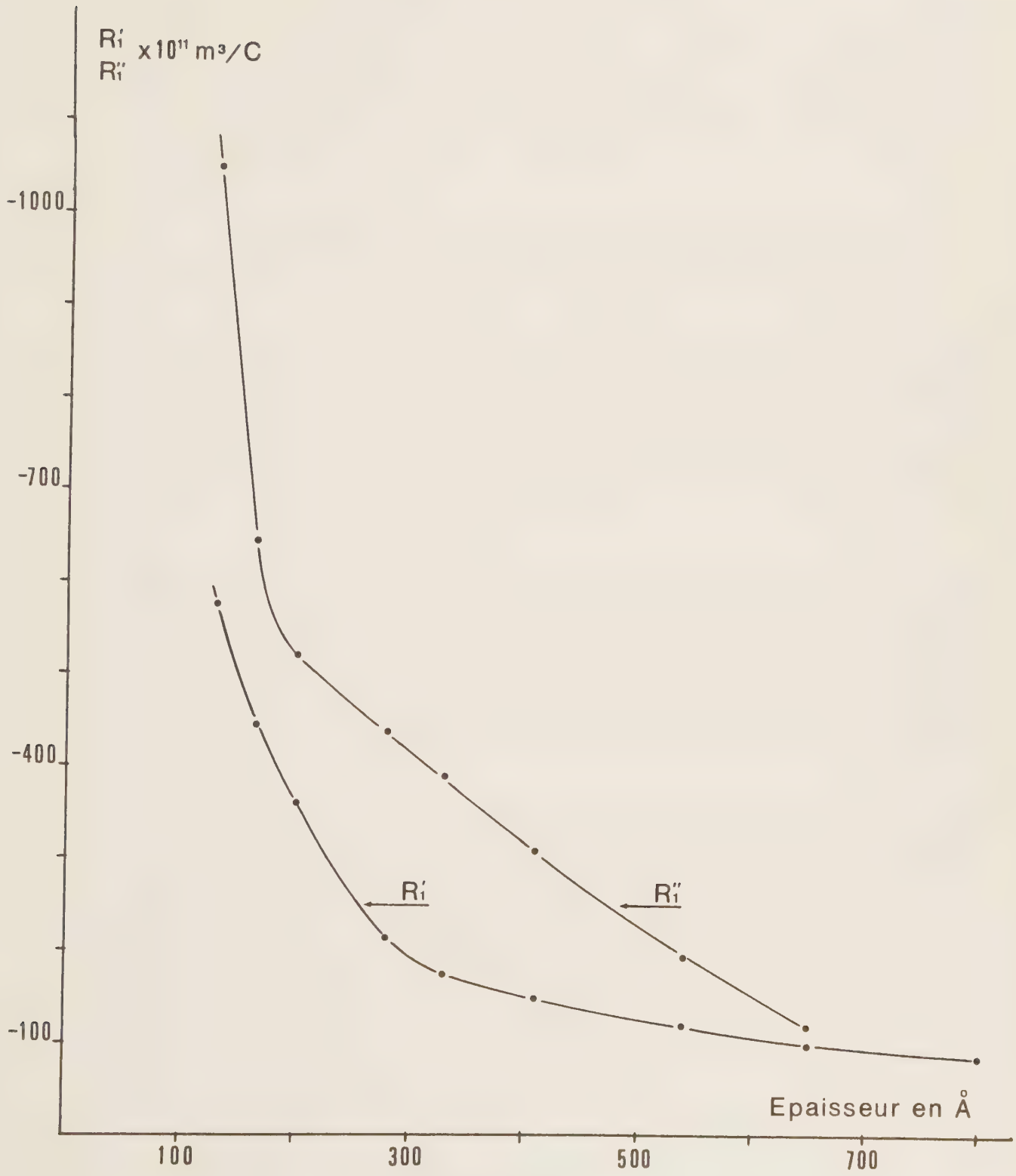

R_1' x10¹¹ m³/C
R_1''
-1000
-700
-400
-100
R_1'
R_1''
Epaisseur en Å
100
300
500
700

FIGURE 5.14

Sur la figure 5.13 j'ai reporté R'_0 en fonction de l'épaisseur, avant et après recuit à 425°C et sur la figure 5.14 R'_1 et R''_1 également en fonction de l'épaisseur mais après recuit seulement. Ces trois quantités sont toujours négatives, ce qui correspond à un transfert de charges par électrons. On peut observer qu'en valeur absolue R'_0 augmente lorsque l'épaisseur diminue, atteint un maximum vers 200 Å puis décroît alors que les valeurs absolues de R'_1 et R''_1 augmentent constamment lorsque l'épaisseur diminue.

Notons que pour une lame épaisse (800 Å) il n'existe qu'une seule configuration en domaines et l'aspect des courbes représentant R'_1 et R''_1 laisse supposer que c'est la configuration I qui subsiste.

Pour les lames très minces (110 Å et au dessus) on obtient également une seule droite "aimantation" (cf. figure 5.11) de pente très élevée (4 000 10^{-11} m^3/C pour 110 Å) et il n'est pas possible de conclure à la survivance de l'une ou l'autre des configurations en domaines. Nous verrons ultérieurement que les propriétés de ces lames doivent être attribuées essentiellement à leur structure discontinue.

Remarque En toute rigueur, lorsque l'aimantation d'un échantillon multidomaines n'est pas parallèle à sa surface, l'énergie magnétostatique due aux charges de surface ne peut, en général, être calculée simplement. Il faut introduire dans les expressions qui lient l'aimantation au champ appliqué une perméabilité tensorielle $[\mu]$ et un tenseur démagnétisant $[N]$ qui demandent, pour être calculés, une connaissance assez précise de la structure magnétique de l'échantillon.

Nous admettrons cependant, qu'étant donné la forme très mince de nos échantillons, la composante du tenseur démagnétisant selon la normale au plan du film est très grande devant les autres, ce qui justifie l'approximation du facteur démagnétisant unique dans les relations 5.7 et 5.8 avec cependant, la condition $\mu_0 N < 1$ puisque la somme des composantes principales du tenseur démagnétisant est toujours égale à l'unité. Nous considérerons alors χ' et χ'' comme des susceptibilités effectives au sens de Schockley [17].

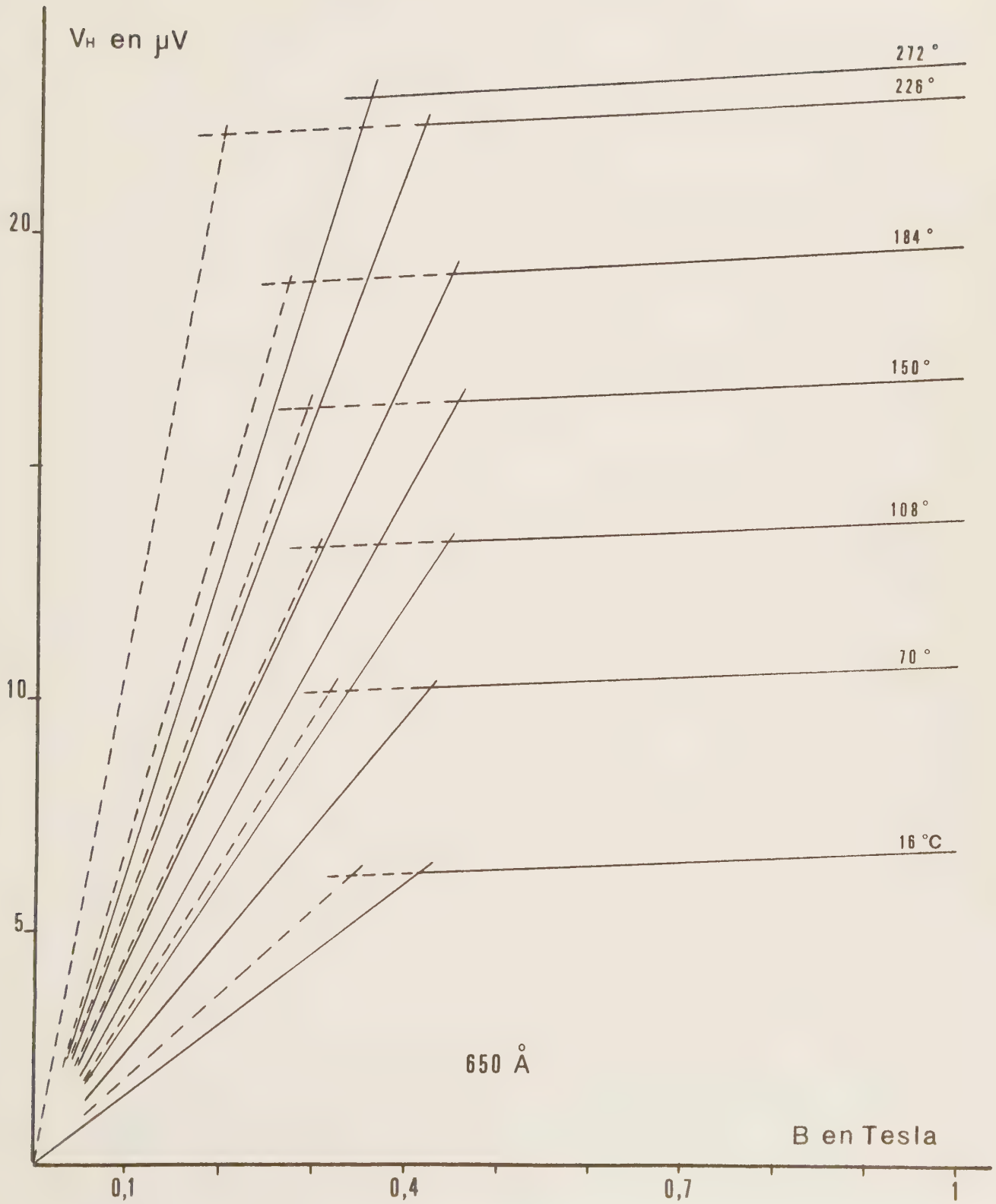

V_H en µV
272 °
226 °
184 °
150 °
108 °
70 °
16 °C
20
10
5
650 Å
B en Tesla
0,1
0,4
0,7
1

FIGURE 5.15

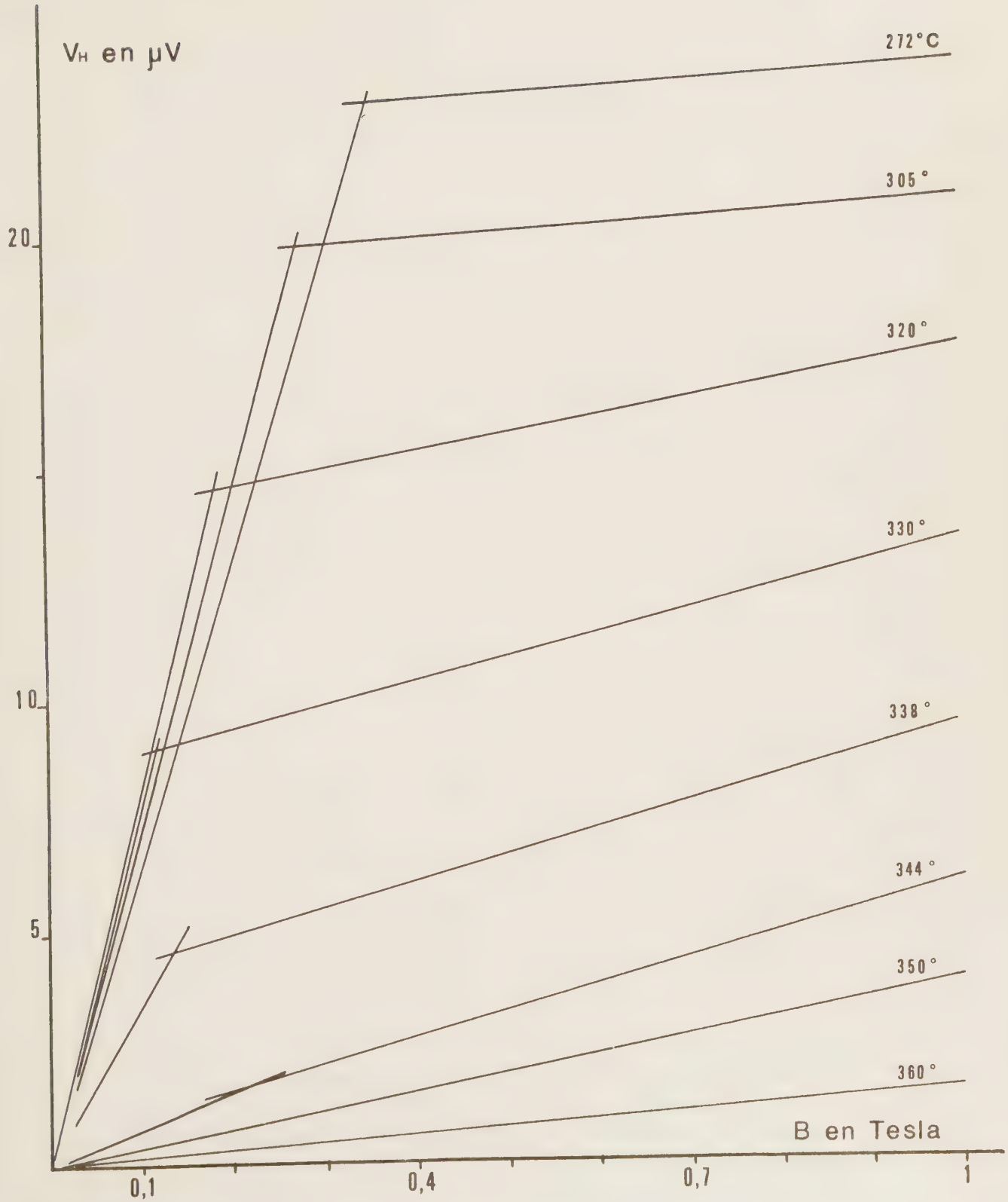

V_H en µV
272°C
305°
320°
330°
338°
344°
350°
360°
20
10
5
0,1
0,4
0,7
1
B en Tesla

FIGURE 5.16

III.3 - *Influence du recuit*

J'ai déjà signalé (cf. § I.2 de ce chapitre) qu'un recuit des films entraîne une forte diminution de la tension transverse mesurée. La figure 5.13 montre qu'il entraîne également une diminution de la valeur absolue de R'_0.

J'ai aussi constaté, pour tous les films, que la valeur absolue de R''_1 diminue lors du recuit. Mais, avant recuit, les valeurs de R''_1 sont trop dispersées pour que l'on puisse établir une relation entre R''_1 et l'épaisseur.

De même, la dispersion des valeurs de R'_1 avant recuit est très grande. Le recuit a pour effet d'augmenter la valeur absolue de R'_1 qui, avant recuit, peut prendre des valeurs voisines de zéro.

Les variations de B'_s et B''_s sous l'effet du recuit sont évidemment liées à celles de R'_1 et R''_1. B''_s augmente toujours sous l'effet du recuit mais en restant inférieure à 0,6 T qui est l'aimantation à saturation du Nickel massif. Au contraire, B'_s diminue après recuit. Avant recuit B'_s peut avoir des valeurs bien supérieures à 0,6 T lorsque R'_1 est petit.

III.4 - *Effet Hall en fonction de la température*

Les figures 5.15 et 5.16 représentent la tension de Hall en fonction de l'induction appliquée pour un film de 650 Å et pour diverses températures entre l'ambiante et 360°C. On constate qu'à induction appliquée constante, la tension de Hall augmente d'abord avec la température, atteint un maximum vers 270°C, ensuite elle décroît et revient à des valeurs inférieures à celles de l'ambiante au voisinage du point de Curie (358°C pour le Nickel massif). Ce comportement qui a été observé pour tous les films d'épaisseurs supérieures à 120 Å est qualitativement semblable à celui du métal massif |18|.

On peut observer également que la pente de la droite représentant V_H au dessus de la saturation augmente d'abord avec la température pour décroître rapidement au voisinage du point de Curie. Ce phénomène apparait beaucoup plus clairement sur la figure 5.17 où j'ai représenté R'_0 en fonction de la température pour quatre lames typiques.

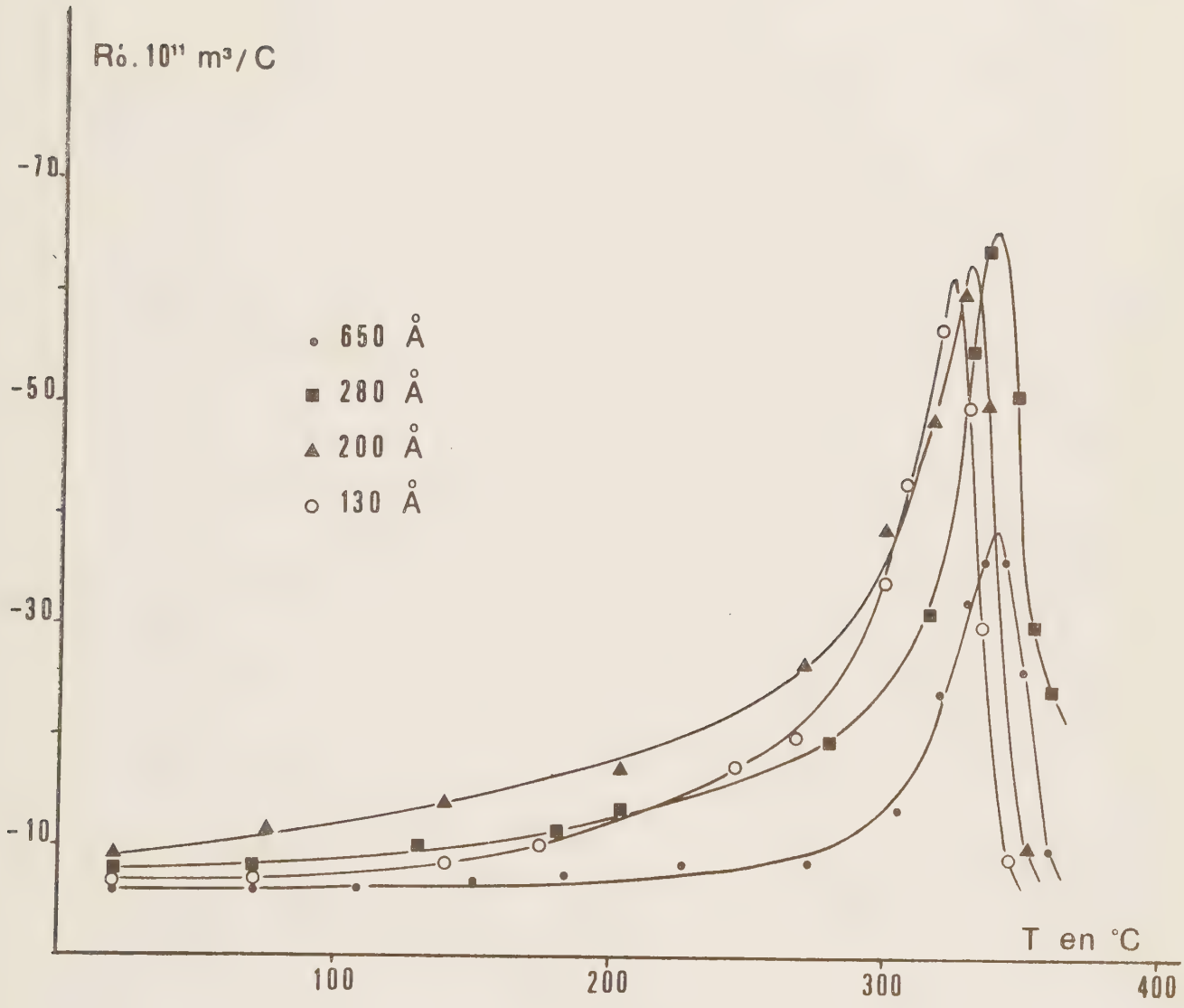


FIGURE 5.17

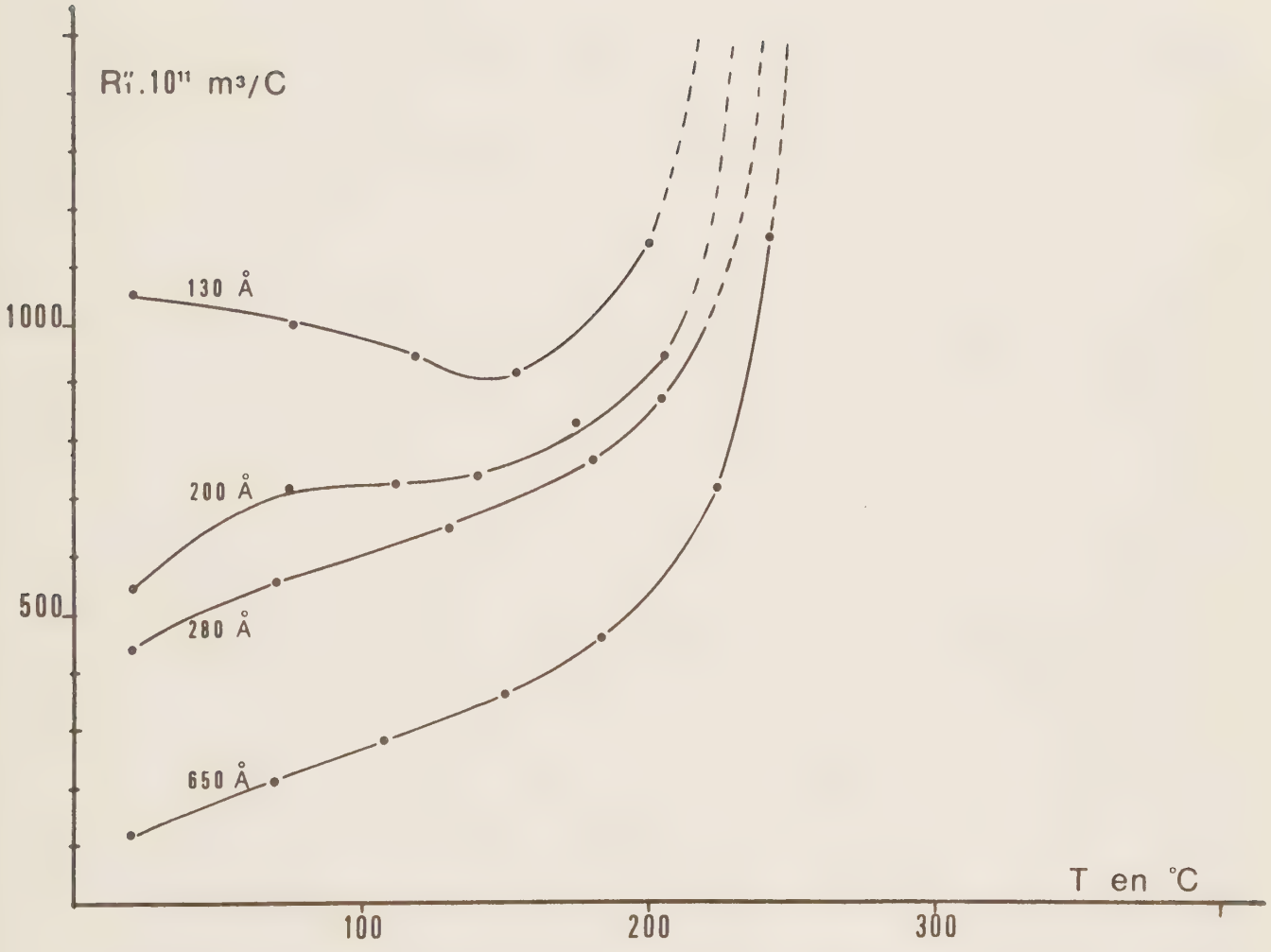


FIGURE 5.18

On constate d'abord que le maximum, en valeur absolue, de R'_0 qui se situe entre 320°C et 350°C est très aigu. La valeur augmente d'abord lorsque l'épaisseur diminue, le maximum maximorum étant atteint vers 280 Å. Au dessous de 280 Å on observe une diminution simultanée de la valeur du maximum et de son abscisse (température) avec l'épaisseur.

Si l'on compare ces résultats à ceux obtenus pour le nickel massif |18| pour lequel le maximum de R'_0 se produit à une température supérieure au point de Curie, il semble que la température de Curie des films de Nickel est inférieure à celle du métal massif mais nous verrons que l'effet Hall se prête mal à une détermination du point de Curie.

Remarque I Toutes les courbes relatives aux lames d'épaisseur comprise entre 650 Å et 280 Å qui n'ont pas été représentées pour ne pas surcharger la figure 5·17 s'intercalent parfaitement entre les courbes relatives à ces deux épaisseurs. Les courbes qui concernent les lames plus épaisses sont quasiment confondues, compte tenu de l'échelle de la figure avec celle marquée 650 Å.

Sur la figure 5.15, comme sur les figures 5.10 et 5.11, j'ai représenté en trait plein les droites "aimantation" relatives à la configuration I et en pointillé celles qui concernent la configuration II. On peut observer que la pente des droites en pointillé augmente constamment avec la température jusque vers 250°C. Au dessus de cette température, la configuration II disparait (cf. § I.5 de ce chapitre et les figures 5.3, 5.4 et 5.7). Le comportement de l'effet "aimantation" de la configuration II apparait mieux sur la figure 5.18 où j'ai représenté R''_1 en fonction de la température pour les quatre mêmes épaisseurs typiques. On y voit que R''_1 tend vers l'infini lorsque la température dépasse 200°C. On observe également une évolution de l'allure de la courbe R''_1 (T) lorsque l'épaisseur diminue. Alors que la variation de R''_1 avec la température est régulière et monotone pour tous les films d'épaisseurs supérieures à 280 Å, elle évolue lorsque l'épaisseur diminue et présente un minimum au voisinage de 150°C pour les lames de faibles épaisseurs.

Remarque II J'ai représenté les courbes R''_1 (T) en pointillé au dessus de 200°C parce que dans ce domaine de température, la valeur B_1 de l'induction au dessus de laquelle la configuration II disparait (B_1 est l'abscisse

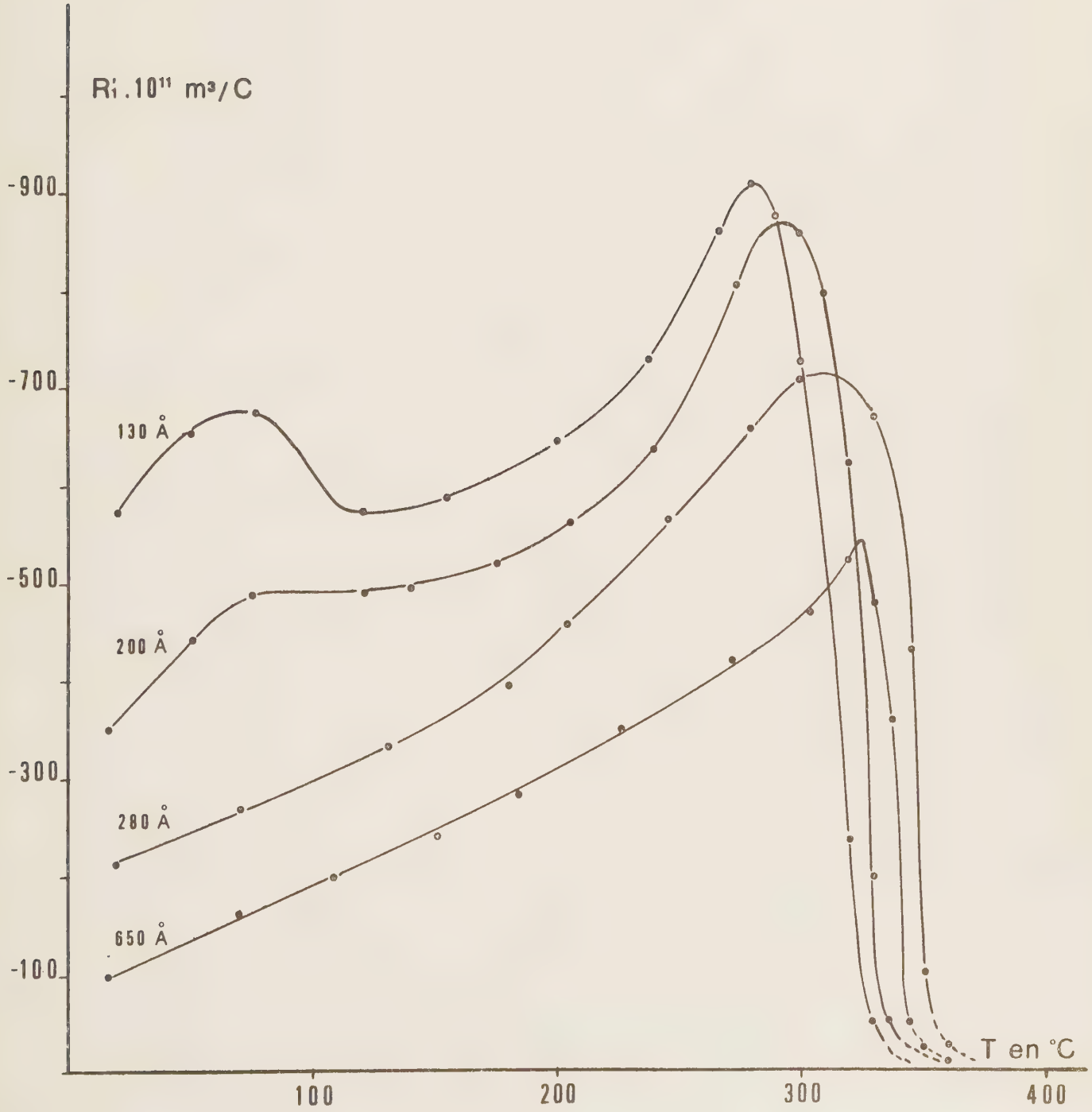

$R_i .10^{11}$ m³/C
-900
-700
-500
-300
-100
130 Å
200 Å
280 Å
650 Å
100
200
300
400
T en °C

FIGURE 5.19

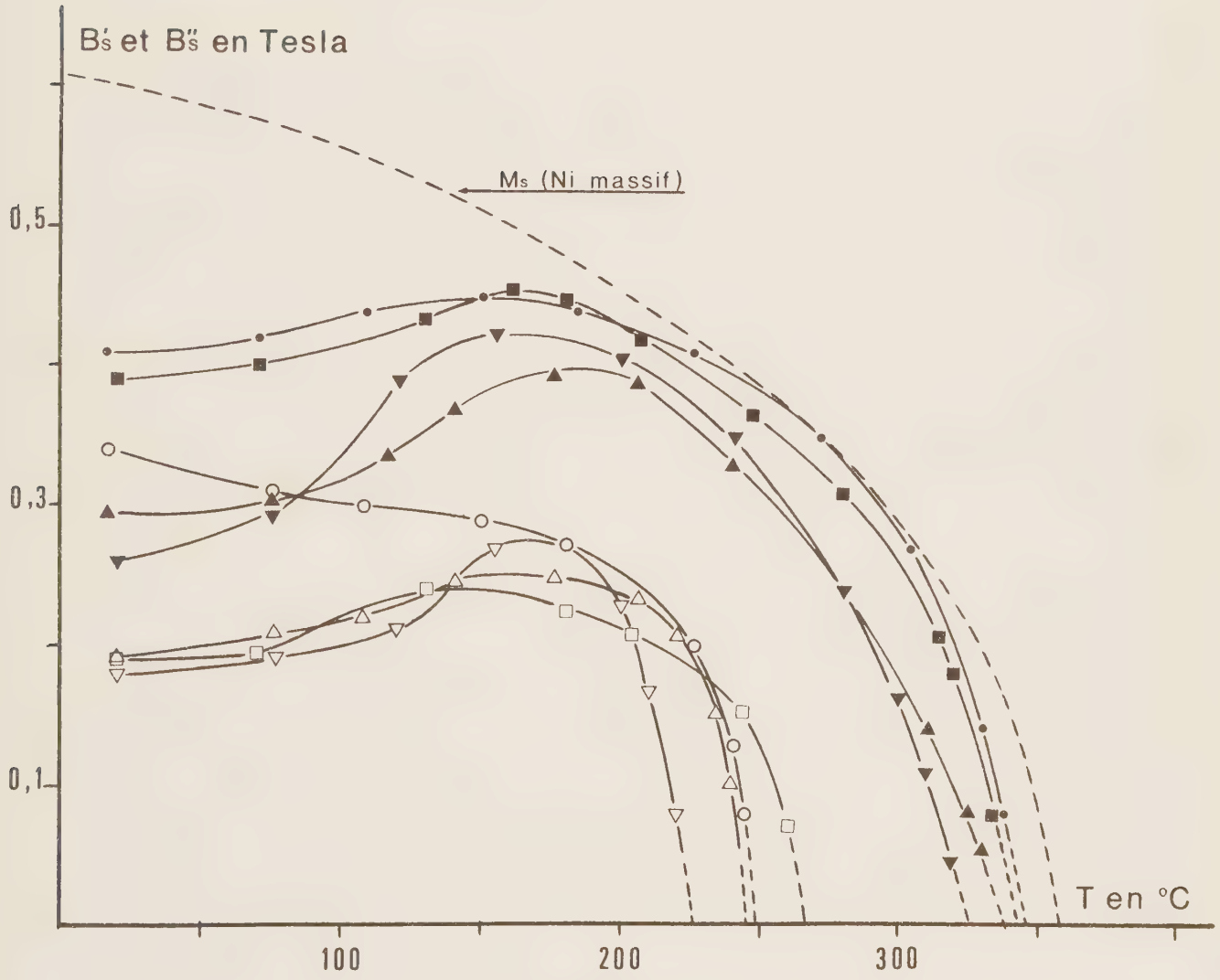


FIGURE 5.20

B's		B"s
•	650 Å	○
■	280 Å	□
▲	200 Å	△
▼	130 Å	▽

du point P de la figure 5.2) est très faible, de l'ordre de quelques dizaines de Gauss, et, à l'incertitude sur la mesure de la tension V_2 s'ajoute l'incertitude sur la mesure de l'induction, ce qui rend la détermination de R''_1 très imprécise. Cependant, après avoir étudié soigneusement dans ce domaine le comportement de lames relativement minces (300 Å et au dessous) pour lesquelles la tension V_2 est tout de même appréciable je peux affirmer qu'en aucun cas, je n'ai observé de diminution de R''_1 lorsque la température approche 250°C.

La figure 5.19 représente R'_1 en fonction de la température pour quatre films ; toujours les mêmes. Pour les films d'épaisseurs supérieures à 280 Å, l'allure générale de la variation est toujours celle du métal massif |18|. On observe d'abord une augmentation régulière et monotone de la valeur absolue de R'_1 avec la température jusque vers 300°C, suivie d'une diminution brutale entre 320°C et 350°C. Au dessus de 350°C, R'_1 est confondu avec R'_0 (tracé en pointillé de la figure 5.19).

En dessous de 280 Å, une augmentation importante de la valeur absolue de R'_1 accompagne la diminution d'épaisseur alors que le maximum de R'_1 (T) se déplace vers des températures plus basses. En outre, comme pour R''_1 (T), la variation de R'_1 (T) pour des températures inférieures à 200°C cesse d'être monotone aux faibles épaisseurs : on observe un second maximum au voisinage de 70°C pour une lame de 130 Å.

La figure 5.20 est relative aux variations de B'_s et B''_s en fonction de la température. On peut constater là encore que les lames d'épaisseurs supérieures à 280 Å ont toutes un comportement identique, tout au moins en ce qui concerne la configuration I, les courbes B'_s (T) étant presque confondues. Celles-ci présentent d'ailleurs un aspect singulier aux températures inférieures à 200°C. En effet, alors qu'au dessus de 200°C les courbes B'_s (T) évoluent parallèlement à la courbe M_s (T) relative au Nickel massif (en pointillé sur la figure 5.20), en dessous de cette température, elles s'écartent résolument de cette courbe. Ce comportement singulier s'accentue encore lorsque l'épaisseur du film diminue. Mais, quelque soit l'épaisseur du film B'_s (T) passe par un maximum entre 150°C et 180°C.

En ce qui concerne la configuration II, les courbes B''_s (T) présentent une allure générale semblable à celle de B'_s (T) mais B''_s (T) reste toujours très inférieure, à température égale, à B'_s (T). B''_s (T) s'annule bien sur au voisinage de 250°C lorsque R''_1 tend vers l'infini (cf. relation 5.10).

IV - ANALYSE DES RESULTATS DU PARAGRAPHE PRECEDENT

IV.1 - *L'effet Hall aux températures inférieures à 250°C*

Il n'est pas possible d'établir une relation qui rende compte des variations des grandeurs représentées sur les figures 5.17 à 5.20 en fonction de la température, en particulier au voisinage du point de Curie. En effet, les relations 5.5 à 5.10 montrent que ces grandeurs dépendent d'une part des coefficients de Hall R_1 et R_0 qui sont liés à la structure électronique des échantillons et celle-ci est considérablement modifiée au passage du point de Curie |20| ; d'autre part, des susceptibilités χ et χ_s et de l'aimantation à saturation M_s dont les variations avec la température, importantes au voisinage du point de Curie, sont mal connues sauf en ce qui concerne M_s. Cependant, il est possible d'obtenir un certain nombre de renseignements qualitatifs sans faire d'hypothèses précises sur les structures magnétique et électronique des échantillons.

Considérons d'abord R'_0 et R'_1. La comparaison des figures 5.17 et 5.19 confirme un résultat bien connu, à savoir que pour un échantillon donné, quelle que soit son épaisseur et tant que la température est assez basse, disons pour fixer les idées inférieure à 250°C, on peut écrire l'inégalité :

$$|R'_0| \ll |R'_1| \tag{5.11}$$

et puisqu'il résulte de la relation 5.5 que :

$$|R_0| \leq |R'_0| \tag{5.12}$$

on peut écrire que, dans ce domaine de température, le terme principal de R'_1 est celui qui contient R_1 soit, d'après 5.7 et en se rappelant que :

$$\mu_0 N' \leq 1$$

et

$$|R_0| \ll |R_1|$$

$$R'_1 \simeq R_1 \frac{\chi'}{1 + \mu_0 N' \chi'} \tag{5.13}$$

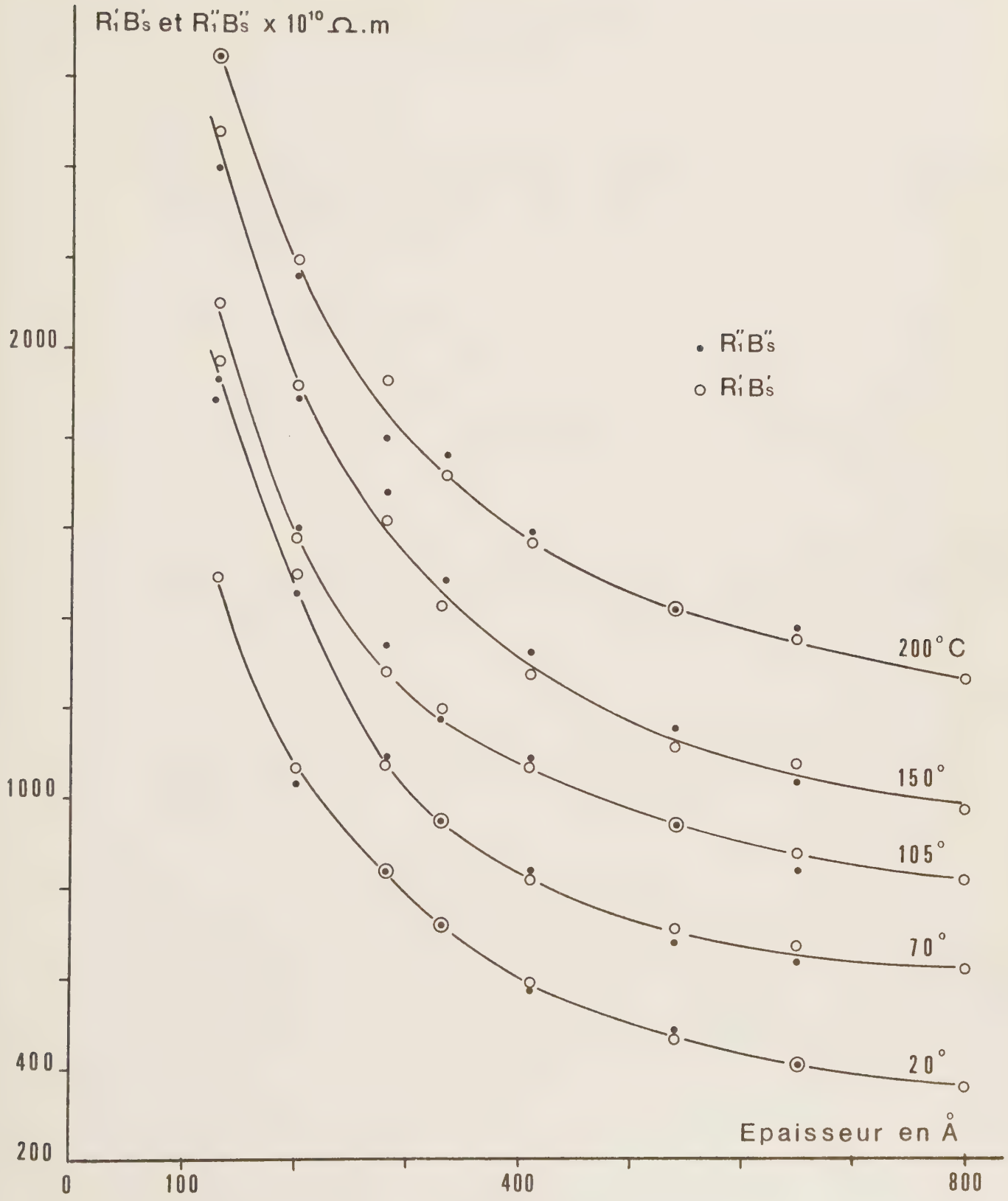

R'1B's et R''1B''s x 10^10 Ω.m
2000
1000
400
200
0
100
400
800
Epaisseur en Å
R''1B''s
R'1B's
200°C
150°
105°
70°
20°

FIGURE 5.21

En remarquant alors que la susceptibilité en champs intenses χ_s est, pour ces températures, négligeable |9| on aboutit à la relation

$$R'_0 \simeq R_0 \qquad (5.14)$$

ce qui correspond fort bien à la faible variation de R'_0 avec la température observée pour $T < 250°C$ sur la figure 5.17 puisque R_0 qui est essentiellement lié à la densité des porteurs de charges électriques doit dépendre peu de la température.

Dans ces conditions, la relation 5.9 qui lie B'_s à M_s se simplifie et devient :

$$B'_s \simeq \frac{1 + \mu_0 N' \chi'}{\chi'} M_s \qquad (5.15)$$

On en conclut immédiatement que pour $T < 250°C$:

$$R'_1 B'_s = R_1 M_s \qquad (5.16)$$

Les considérations précédentes qui s'appliquent à R'_1 s'appliquent à fortiori à R''_1 puisque $|R''_1| > |R'_1|$. Par suite, si l'analyse phénoménologique du chapitre IV est valable, on doit vérifier que :

$$R'_1 B'_s = R''_1 B''_s = R_1 M_s \qquad (5.17)$$

Effectivement, on peut constater sur la figure 5.21, où j'ai reporté $R'_1 B'_s$ et $R''_1 B''_s$ en fonction de l'épaisseur pour diverses températures que la première des égalités (5.17) est remarquablement vérifiée.

Ainsi, aux températures inférieures à 250°C, les résultats obtenus nous donnent directement le coefficient de Hall "ordinaire" R_0 et si l'on connait M_s les relations 5.17 nous permettent de déterminer le coefficient de Hall "aimantation" ou "extraordinaire" R_1. Malheureusement M_s n'est pas directement mesurable dans mes expériences, mais, nous verrons au chapitre suivant que, moyennant quelques hypothèses sur la structure magnétique des films on peut obtenir une évaluation satisfaisante de M_s.

IV.2 - *Effet Hall au voisinage du point de Curie*

Lorsque la température s'élève au dessus de 250°C, χ_s cesse d'être négligeable. Il en est de même du second terme de 5.5 qui contient R_1. Il en résulte une augmentation rapide de R'_0 avec T tant que $|R_1| >> |R_0|$. Mais au point de Curie, le ferromagnétisme disparait et par conséquent les effets spontanés aussi. Il en résulte qu'à partir d'une certaine température $|R_1|$ diminue rapidement et même si χ_s continue à croître $|R'_0|$ va diminuer.

En pratique, tout cela se produit dans un intervalle de température de quelques degrés au voisinage du point de Curie T_C. D'après les résultats de Bélov, reproduits par Herpin |9| la susceptibilité χ_s du nickel massif atteint un maximum pour une température supérieure de 1°C à 2°C à T_C. D'autre part, il semble que dans l'état paramagnétique, subsiste près du point de Curie un certain ordre à courte distante |9| qui fait que les effets spontanés ne disparaissent peut être pas totalement. Enfin, il faudrait tenir compte également des variations de R_0 avec la température au voisinage de T_C. Autrement dit, il est très difficile de déterminer si le maximum de R'_0 doit se produire au dessus ou au dessous de T_C qui ne peut être obtenu de cette manière.

Remarquons encore que les couches minces sont formées de très petits cristallites, il peut en résulter un certain caractère superparamagnétique des films qui se superpose au ferromagnétisme au dessous de T_C. Nous verrons d'ailleurs que ce caractère est prépondérent dans les films très minces (en dessous de 120 Å). Il en résulte que χ_s est probablement plus élevé dans un film que dans un échantillon massif, ce qui explique que R'_0 dépend d'autant plus de la température que le film est plus mince (cf. figure 5.17).

En ce qui concerne les valeurs de R'_1 (T) au dessus de 200°C, elles sont très voisines de celle de R_1. En effet, on constate sur la figure 5.20 qu'au dessus de 200°C, les valeurs de B'_s sont relativement proches de celles de M_s (T) pour le massif. Or, compte tenu des ordres de grandeur de R'_0, R_0 et χ_s, il résulte de 5.9 que cela entraîne : $R'_1 \simeq R_1$. La figure 5.19 confirme alors notre propos des lignes précédentes relatif à la diminution rapide de R_1 au voisinage de T_C.

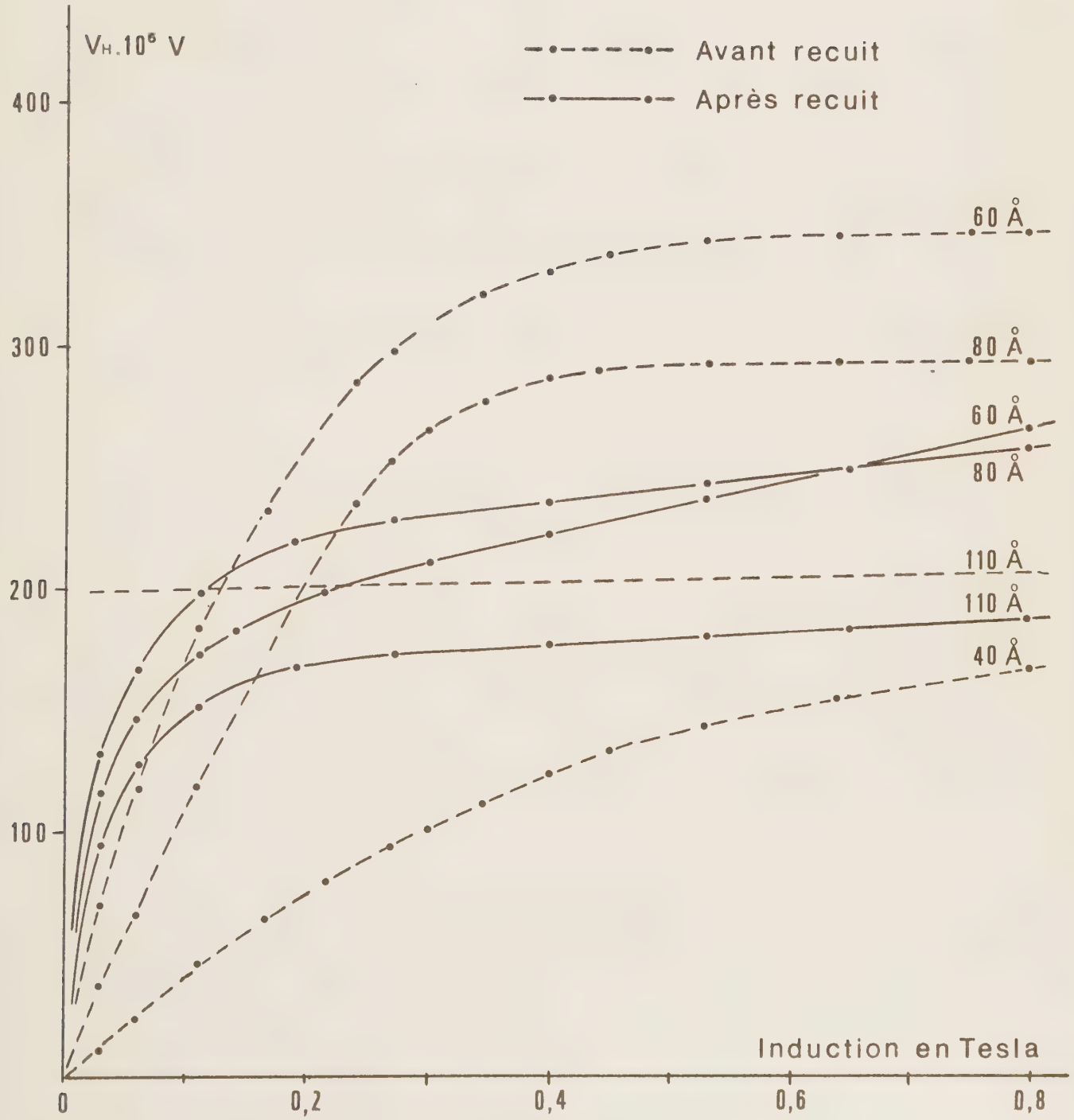

$V_H.10^6$ V
Avant recuit
Après recuit
400
300
200
100
60 Å
80 Å
60 Å
80 Å
110 Å
110 Å
40 Å
Induction en Tesla
0
0,2
0,4
0,6
0,8

FIGURE 5.22

Lorsque la température approche du point de Curie, la susceptibilité différentielle χ' diminue pour devenir égale à χ_s. Il en résulte que la pente R'_1 de la droite "aimantation" donnée par 5.7 devient égale à celle R'_0 de la droite en champs intenses donnée par 5.5 pour une température voisine de T_C mais dont la valeur est mal déterminée. Autrement dit, l'abscisse B'_s du point d'intersection de ces deux droites va diminuer avec la température, atteindre un minimum pour une température vraisemblablement inférieure à T_C puis croître. Elle sera infinie pour $R'_1 = R'_0$. C'est effectivement ce que l'on observe sur la figure 5.16 où B'_s après être descendu à 0,11 T pour 330°C remonte à 0,13 T pour 338°C puis à 0,2 T pour 344°C. Ceci signifie que l'extrapolation vers les hautes températures de la courbe $B'_s(T)$ tracée pour les basses températures conduira à un point de Curie apparent vraisemblablement inférieur au point de Curie réel. De même, la diminution avec l'épaisseur du film du point de Curie apparent que l'on constate sur la figure 5.20 peut être tout simplement due à l'augmentation de χ_s provenant du caractère superparamagnétique des films minces.

En conclusion, l'étude de l'effet Hall, en particulier dans les couches minces, n'est pas un moyen commode pour déterminer le point de Curie.

V - EFFET HALL DES COUCHES TRES MINCES (Epaisseur inférieure à 120 Å)

Dans ce domaine d'épaisseurs, les courbes $V_2(B)$ sont pratiquement symétriques par rapport à l'origine ce qui signifie que l'aimantation rémanente est nulle. On peut donc, en employant la méthode du paragraphe III.3 du chapitre IV tracer la courbe représentant la tension de Hall en fonction de l'induction. Les résultats obtenus à la température ambiante sont représentés pour quelques films sur la figure 5.22. Les courbes en pointillé sont relatives aux mesures faites avant recuit, celle en trait plein concernent les résultats obtenus après recuit à 425°C.

Avant recuit, on peut observer que la tension de Hall à induction constante augmente lorsque l'épaisseur diminue, atteint un maximum aux environs de 60 Å et diminue ensuite rapidement avec l'épaisseur. On constate également que le coude de la courbe qui se produit à l'approche de la saturation est d'autant moins marqué que le film est plus mince.

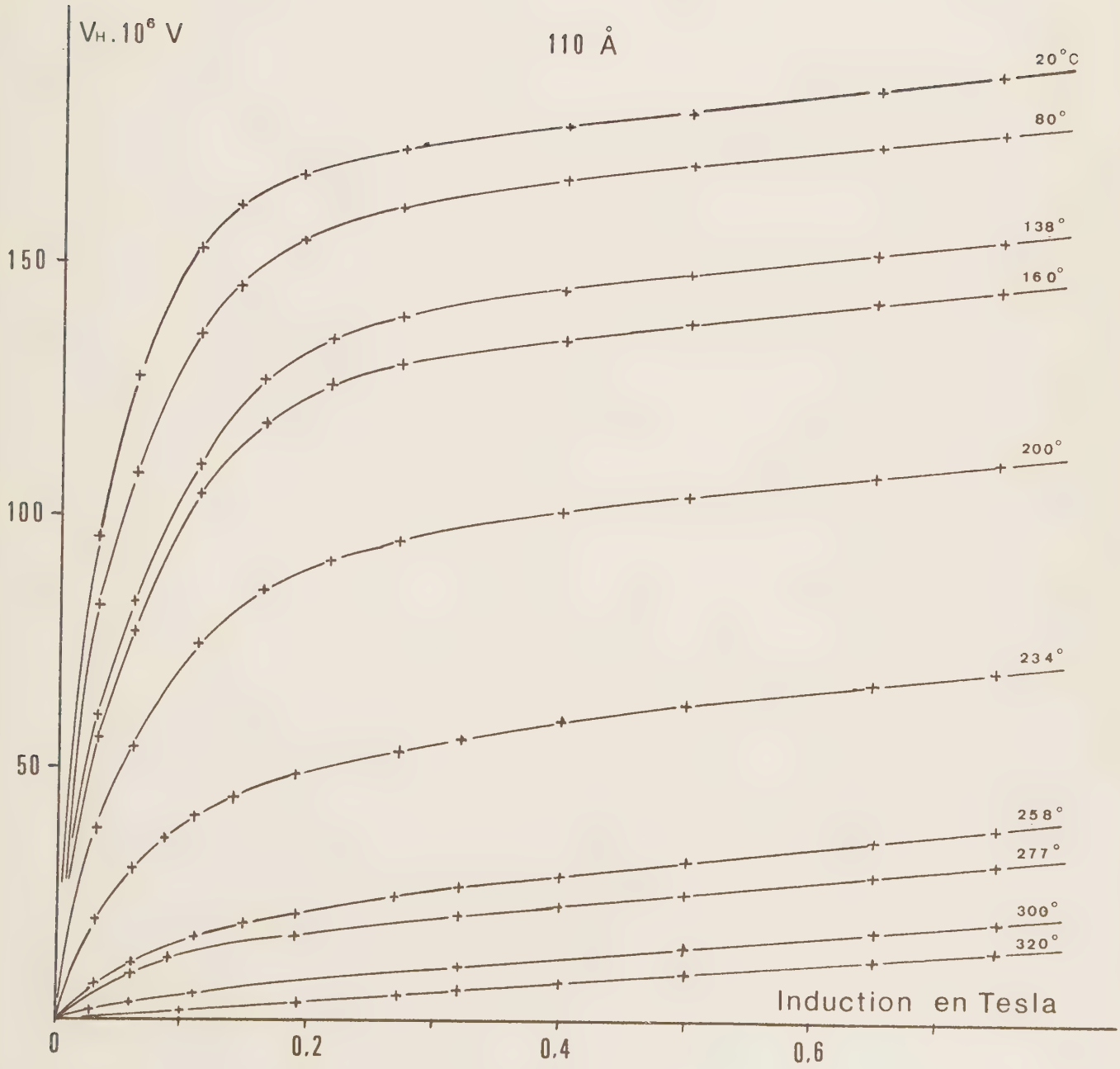

$V_H.10^6$ V
110 Å
20°C
80°
138°
160°
200°
234°
258°
277°
300°
320°
150
100
50
0
0,2
0,4
0,6
Induction en Tesla

FIGURE 5.23

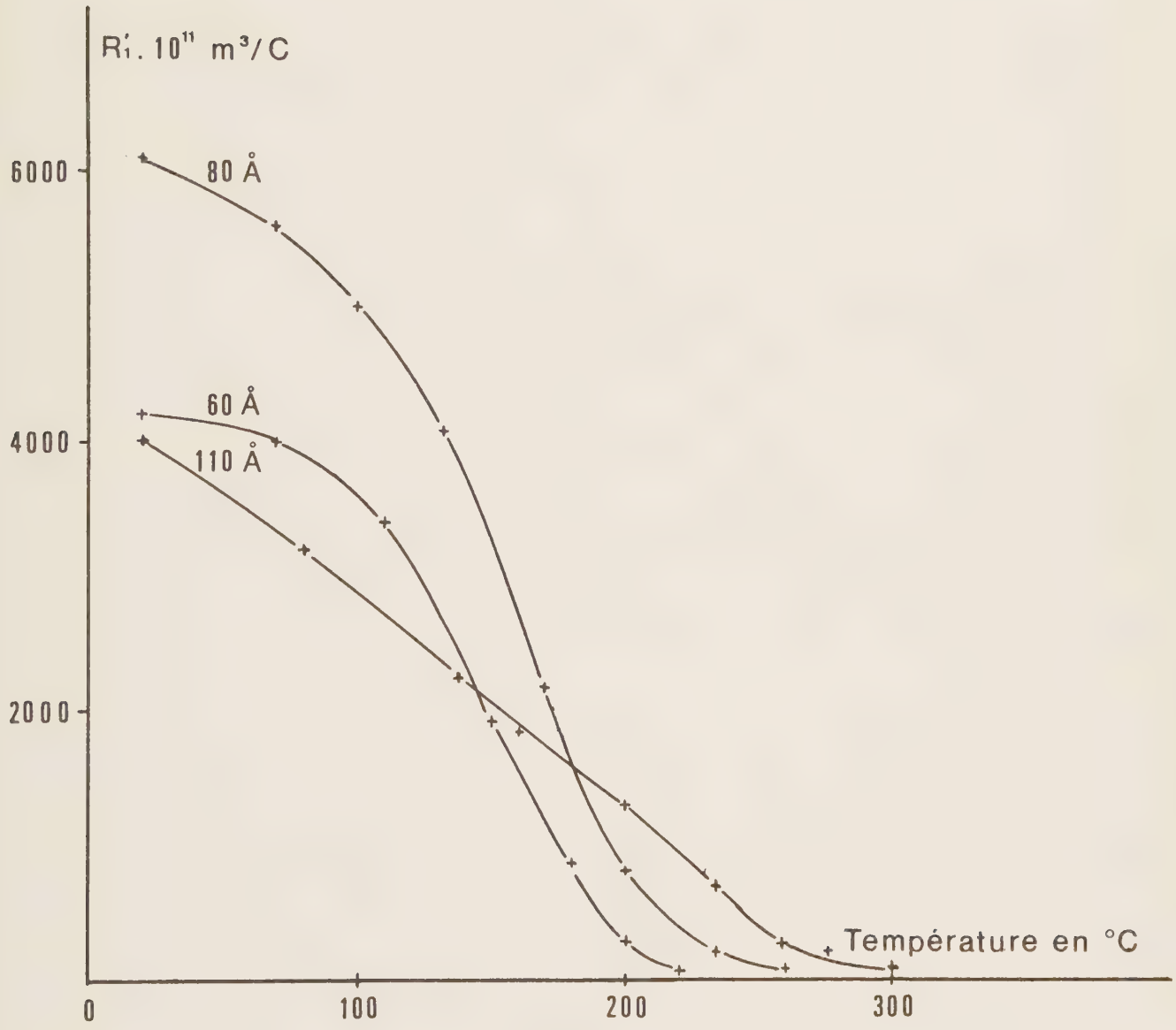

$R_i' . 10^{11}$ m³/C
6000
4000
2000
80 Å
60 Å
110 Å
Température en °C
0
100
200
300

FIGURE 5.24

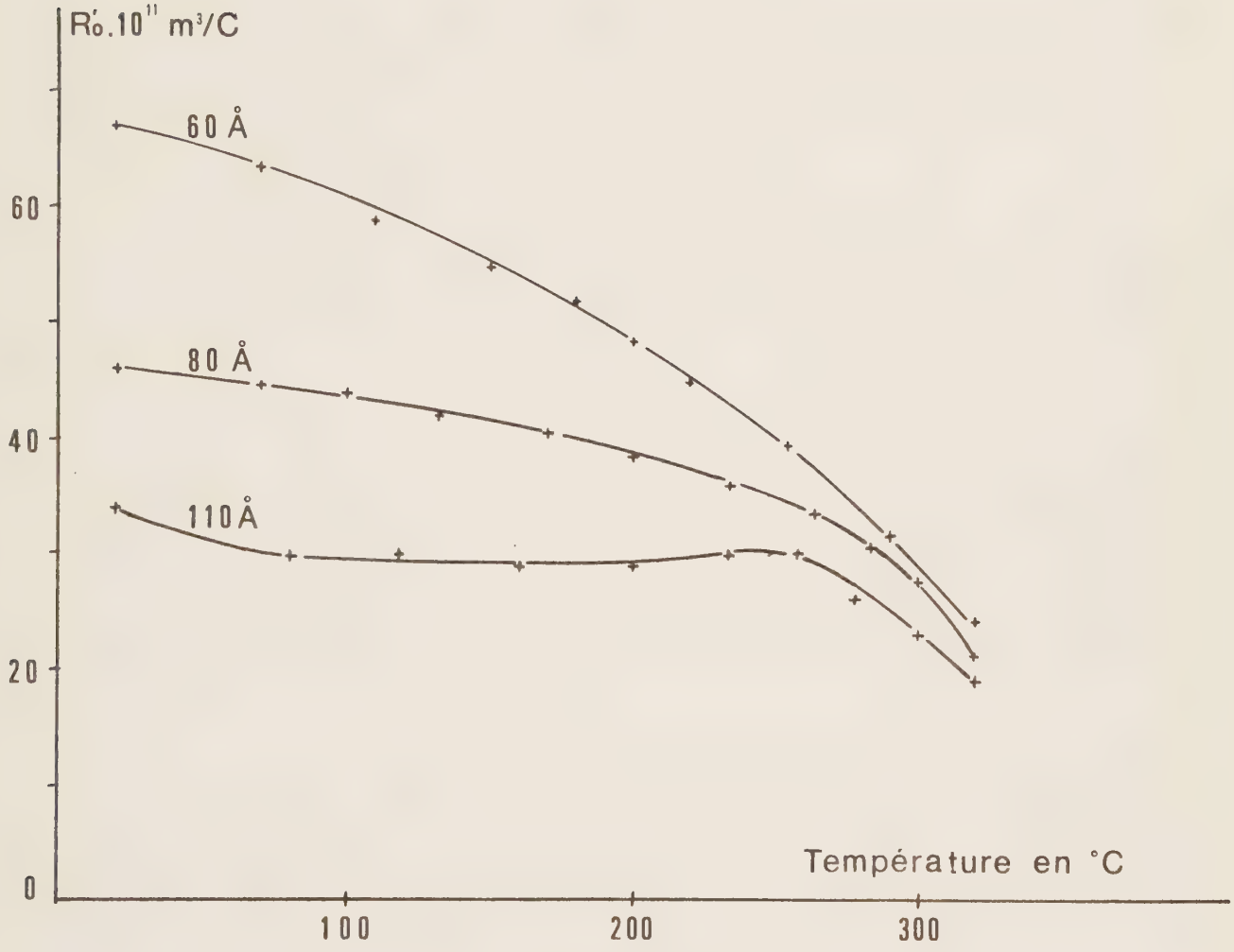


FIGURE 5.25

Si on trace les tangentes à l'origine aux diverses courbes $V_H = f(B)$, il apparait que l'induction à saturation que nous continuerons d'appeler B'_s, diminue d'abord avec l'épaisseur, passe par un minimum, puis augmente lorsque les lames deviennent extrêmement minces.

Après recuit à 425°C, la tension de Hall à induction constante, pour une épaisseur donnée, a d'autant plus diminué que le film est plus mince (pour un film de 40 Å, elle devient à peu près négligeable). La tangente à l'origine devient presque verticale et la pente de la droite qui représente V_H au dessus de la saturation a augmenté dans de fortes proportions ; l'augmentation étant d'autant plus grande que l'épaisseur est plus faible.

La figure 5.23 représente la tension de Hall d'une lame de 110 Å en fonction de l'induction pour diverses températures entre l'ambiante et 320°C. On constate qu'à induction constante elle diminue constamment lorsque la température croît.

La même observation s'applique à la pente R'_1 de la tangente en $B = 0$ à la courbe $\rho_H = f(B)$ et à celle R'_0 de la droite représentant ρ_H au dessus de la saturation. Les maxima observés pour les films plus épais ont totalement disparu. Ces deux quantités sont respectivement représentées en fonction de la température et pour plusieurs épaisseurs sur les figures 5.24 et 5.25. On peut en outre constater sur ces figures que les valeurs de $|R'_1|$ et $|R'_0|$ sont dans les films très minces 8 à 10 fois celles obtenues pour des films d'épaisseurs supérieures à 120 Å.

Ainsi, après recuit à 425°C, il apparait une discontinuité brutale dans toutes les propriétés physiques des films lorsque leur épaisseur est voisine de 120 Å. Les films plus épais ont un comportement qui dépend de l'épaisseur mais qui reste cependant qualitativement semblable à celui des échantillons massifs ; ils présentent encore tous les caractères du ferromagnétisme. Il n'en est pas de même pour les films plus minces.

Remarquons qu'en ce qui concerne ces derniers, la durée (et aussi la température) du recuit a une grande importance. Deux films de même épaisseur, aux erreurs de mesures près qui, dans ce domaine sont relativement importantes, présentent des propriétés totalement différentes s'ils n'ont pas été recuits dans des conditions rigoureusement identiques. Ceci, joint au fait que les résultats obtenus avant recuit sont beaucoup plus dispersés que pour les films plus épais, explique un certain défaut de reproductibilité que j'ai constaté et m'anène à penser que la notion d'épaisseur n'a plus beaucoup de signification pour les films très

minces. C'est la structure du film, dimensions et répartition des grains, qui détermine ses propriétés. Celle ci est étroitement liée à la nature du support et aux conditions du dépôt (vitesse de dépôt, température, etc...) ; conditions que je n'ai pu contrôler avec toute la précision souhaitable.

Remarque Sur la figure 5.22, je n'ai représenté pour l'épaisseur 110 Å que la droite représentant V_H au dessus de la saturation avant recuit, car pour cette épaisseur, l'aimantation rémanente n'est pas nulle avant recuit. Après recuit, la courbe V_H (B) présente l'aspect classique d'un cycle d'hystérésis (cf. § I.4 de ce chapitre) mais le cycle est très étroit et les tangentes à la rémanence presque verticales, si bien qu'aux erreurs de mesure près, on obtient pratiquement le même résultat en suivant une branche du cycle pour tracer la courbe $V_H = f(B)$ ou en faisant la moyenne des valeurs relatives à chaque branche.

Chapitre VI

Structures magnétique et électronique des films

I - *STRUCTURE MAGNETIQUE DES FILMS TRES MINCES*

Les films très minces sont formés de grains isolés les uns des autres. Il en résulte que la tension de Hall que l'on mesure dépend non seulement de la structure électronique du matériau constituant le film mais aussi de la forme et de la distribution des grains. Pour le montrer, nous allons utiliser un modèle très simplifié de la couche granulaire dû à Volger |58| et à Bube |5|.

Considérons un film formé de particules identiques régulièrement distribuées. Chaque particule a la forme d'un parallélépipède dont la base est un carré de côté ℓ_1 et dont la hauteur est l'épaisseur a du film. Chaque particule est séparée de ses voisines par une distance ℓ_2 (cf. figure 6.1a).

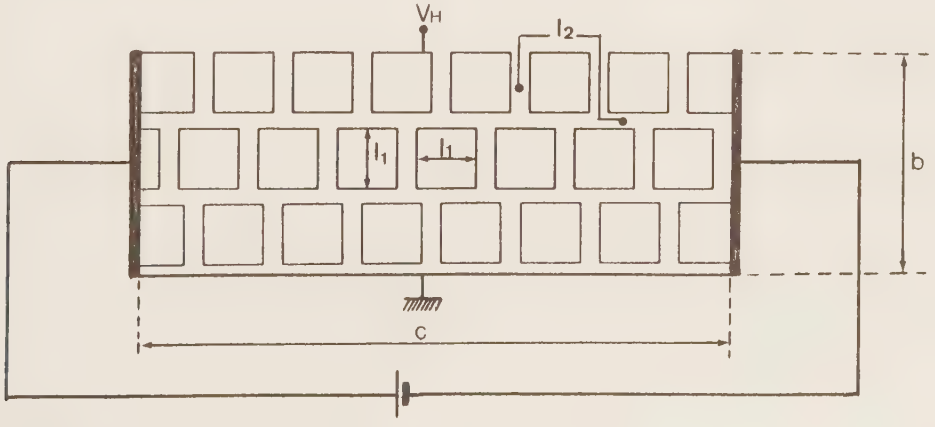


FIGURE 6.1a

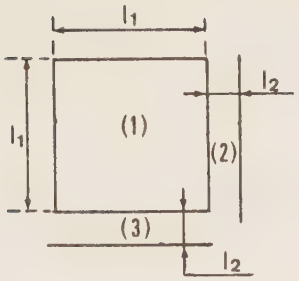


FIGURE 6.1b

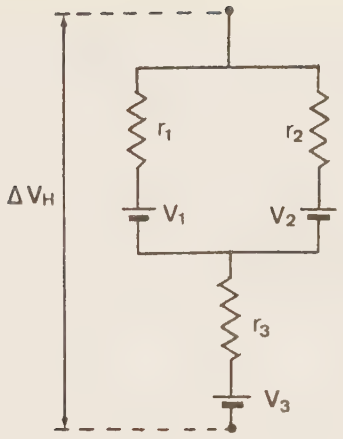


FIGURE 6.1c

On désigne par ρ_1 la résistivité d'un îlot et on introduit une résistivité ρ_2 qui caractérise le milieu intergranulaire. On pose

$$\alpha = \frac{\rho_1}{\rho_2} \qquad \text{et} \qquad \beta = \frac{\ell_2}{\ell_1}$$

Pour calculer la tension de Hall on admet que le film est constitué par l'association de cellules élémentaires semblables à celle de la figure 6.1b. Il y a $c/(\ell_1 + \ell_2)$ cellules en parallèles, c étant la longueur du film et $b/(\ell_1 + \ell_2)$ cellules en série dans la largeur b du film. Chaque cellule fournit une tension de Hall ΔV_H et la tension V_H mesurée entre les sondes de Hall est :

$$V_H = \frac{b}{\ell_1 + \ell_2} \Delta V_H \qquad (6.1)$$

Il y a trois contributions à la tension de Hall dans chaque cellule élémentaire : celle due à l'effet Hall de la particule (1) (cf. figure 6.1b), en parallèle avec celle due à l'effet Hall de l'espace intergranulaire (2) qui sépare la particule (1) de la particule suivante dans la direction parallèle à la longueur du film et une troisième contribution due à l'effet Hall dans l'espace intergranulaire (3) qui sépare la particule (1) de la particule suivante dans la direction parallèle à la largeur du film. Cette dernière tension est en série avec les deux autres.

Le circuit équivalent à une cellule élémentaire, représenté sur la figure 6.1c montre que :

$$\Delta V_H = V_1 \frac{V_1 - V_2}{r_2 + r_1} r_1 + V_3 \qquad (6.2)$$

En désignant par ρ_{H1} la résistivité de Hall d'un îlot et en introduisant une résistivité de Hall ρ_{H2} pour caractériser l'espace intergranulaire, on obtient la résistivité de Hall mesurée ρ_H sous la forme :

$$\rho_H = \rho_{H1} \frac{1}{(1 + \beta + \beta^2 + \alpha\beta)(1 + \alpha\beta)} +$$

$$\rho_{H2} \frac{\beta(\alpha + \beta)}{(1 + \beta + \beta^2 + \alpha\beta)(1 + \beta)} \left[1 + \frac{\alpha\beta(1 + \beta)}{(\alpha + \beta)(1 + \alpha\beta)}\right] \qquad (6.3)$$

L'introduction d'une résistivité ρ_2 et d'une résistivité de Hall ρ_{H2} pour caractériser l'espace intergranulaire n'a absolument rien de rigoureux. En effet, il est relativement simple d'évaluer ρ_2 en l'absence de champ magnétique en considérant l'effet tunnel entre deux grains voisins. Le problème se ramène, avec le modèle utilisé ici, à un problème à deux dimensions (cf chapitre III). Il n'en est pas de même en présence d'un champ magnétique. Il faut alors considérer le problème à trois dimensions en envisageant l'effet tunnel entre un grain donné et tous ses voisins. Or, la forme de la barrière de potentiel qui sépare un grain de ses plus proches voisins n'est pas simple. Cependant, l'expérience a montré [8] que la magnétorésistance d'un film de nickel très mince, soumis à une induction normale à son plan, est faible ; de telle sorte qu'il est plausible d'admettre, en première approximation, que la formule établie en l'absence de champ magnétique est encore valable lorsqu'un tel champ existe. Cette formule montre que ρ_2 augmente rapidement avec ℓ_2 et que pour un film donné (ℓ_1 et ℓ_2 fixés) ρ_2 n'est fonction que de la température (cf. chapitre III).

Quant à la résistivité de Hall ρ_{H2}, on peut affirmer qu'elle ne présente pas les caractères du ferromagnétisme puisqu'elle se rapporte au vide. La théorie élémentaire de l'effet Hall montre qu'elle est inversement proportionnelle au nombre moyen d'électrons qui circulent par unité de volume dans l'espace intergranulaire. Elle est donc, en première approximation, proportionnelle à ρ_2. Ce qui signifie que ρ_{H2} sera d'autant plus importante que le film sera plus mince et que, pour un film donné, ρ_{H2} sera une fonction linéaire croissante de l'induction.

Remarquons que la relation 6.3 et le raisonnement qui y conduit sont beaucoup mieux fondés lorsque l'espace intergranulaire est rempli par un milieu conducteur ; les résistivités ρ_2 et ρ_{H2} étant alors bien définies. C'est pourquoi, la relation 6.3 sera encore valable pour tous les films inhomogènes que l'on peut schématiser par la figure 6.1. En particulier, on pourra l'appliquer à des films lacunaires, c'est-à-dire à des films formés de grains assez gros reliés entre eux par des "étranglements" et même à des films formés de cristallites séparés les uns des autres par des zones où la distorsion du réseau est importante.

Il en résulte, que si l'on considère des films de nickel d'épaisseurs décroissantes, la résistivité de Hall mesurée ρ_H sera d'abord, dans les films les plus épais donc continus, celle de l'échantillon dans son ensemble. Elle présentera en fonction de l'induction appliquée, l'allure habituelle de la résistivité de Hall des ferromagnétiques. Puis, lorsque le film devient inhomogène, elle sera déterminée essentiellement par le terme en ρ_{H1} de 6.3, c'est-à-dire par la résistivité de Hall d'une particule ferromagnétique de petites dimensions multipliée par un facteur inférieur à l'unité qui dépend de la dimension et de la distribution des particules. Mais au fur et à mesure que l'épaisseur diminue, le terme en ρ_{H2} augmente d'importance et il peut arriver, en dessous d'une certaine épaisseur, le film étant granulaire, qu'il devienne prépondérant. Par suite, ρ_H, donc V_H, tendent à devenir linéaires en B lorsque l'épaisseur diminue. C'est effectivement ce que l'on observe expérimentalement (figure 5.22).

Dans les films inhomogènes mais suffisamment épais pour que la résistivité de Hall soit essentiellement déterminée par le terme en ρ_{H1}, la courbe ρ_H (B) peut présenter une allure différente de celle des échantillons massifs.

Tout d'abord, en dessous d'une certaine taille critique qui dépend de la forme du grain et qui, pour le nickel, correspond à un diamètre moyen de l'ordre de 300 Å, la particule sera monodomaine |46|. D'autre part, l'expérience |3| |15| et la théorie |1| |2| |24| |52| montrent qu'une particule isolée, dont le diamètre moyen est inférieur à 50 Å environ, possède une aimantation à saturation M_s inférieure à celle du nickel massif. En outre, le moment magnétique M_sV d'un grain ferromagnétique de volume V est soumis à des fluctuations thermiques |47|. Inappréciables lorsque les dimensions du grain sont suffisamment importantes, on ne peut plus négliger ces fluctuations lorsque l'on considère des grains aussi petits que ceux qui forment un film très mince. Le temps de relaxation du phénomène devient alors très petit par rapport à la durée des observations |47|.

Si bien que si l'on considère une collectivité de particules suffisamment proches les unes des autres pour qu'il y ait des interactions magnétiques entre-elles et c'est le cas dans un film très mince, tout se passe comme si les moments magnétiques des particules étaient, à chaque instant, redistribuées dans toutes les directions. C'est exactement l'hypothèse qui est à la base de la théorie du paramagnétisme de Langevin |39|. On en déduit que l'aimantation d'un grain placé dans un champ d'induction B_e est :

$$M = M_s \, L \left(\frac{M_s \, V}{kT} \, B_e\right) = M_s \left[\coth \frac{M_s \, V \, B_e}{kT} - \frac{kT}{M_s \, V \, B_e} \right] \qquad (6.4)$$

k est la constante de Boltzman, T la température absolue et B_e l'induction effective qui agit sur une particule ; c'est la somme de l'induction appliquée B et d'un terme traduisant l'action de l'ensemble des grains sur un grain donné |25| |51|. On pose :

$$B_e = B + W \langle M \rangle \qquad (6.5)$$

$\langle M \rangle$ désigne l'aimantation globale de l'échantillon et W un coefficient qui dépend de la taille et de la distribution des grains : c'est une constante pour un film donné.

La susceptibilité dans les champs faibles de telles collectivités de particules est très supérieure à celles des paramagnétiques normaux, c'est pourquoi Elmore |16| les a qualifiées de superparamagnétiques.

Dans ces conditions, la résistivité de Hall mesurée ρ_H sera :

$$\rho_H = \left[R_0 \, B + R_1 \, M_s \, L \left(\frac{M_s \, V \, B_e}{kT}\right) \right] \frac{1}{(1 + \beta + \beta^2 + \alpha\beta)(1 + \alpha\beta)} \qquad (6.6)$$

R_0 et R_1 sont les coefficients de Hall d'une particule. Ils dépendent bien entendu de ses dimensions.

Etant donné que R_1 est toujours très supérieur à R_0, la courbe ρ_H (B) pour un film de ce type doit présenter, à peu près, l'aspect d'une courbe de Langevin. Mais, en pratique, un film n'est pas composé par un arrangement régulier de particules identiques et la résistivité de Hall que l'on mesure correspond à une moyenne prise sur l'ensemble des particules et la courbe ρ_H (B) dépend de la granulométrie.

Pour obtenir une expression correcte de ρ_H, il faut donc considérer chaque particule du modèle schématisé sur la figure 6.1 comme une particule "moyenne". C'est-à-dire qu'il faut remplacer dans (6.7) les coefficients R_0 et R_1 par des moyennes $\langle R_0 \rangle$ et $\langle R_1 \rangle$ prises sur l'ensemble des particules et l'aimantation M donnée par (6.4) par l'aimantation moyenne $\langle M \rangle$ de l'échantillon.

Dans les champs faibles, on peut développer la fonction de Langevin en série. On ne conserve que le premier terme de cette série et en prenant une moyenne sur la répartition en volume des grains on obtient |27|.

$$\langle M \rangle = n \int_0^\infty f(V) \frac{M_s^2 V^2}{3kT} B_e \, dV$$

Soit, en supposant tous les grains assez gros pour que M_s soit constant :

$$\langle M \rangle = n \frac{M_s^2 \langle V^2 \rangle}{3kT} (B + W \langle M \rangle) \qquad (6.7)$$

n est le nombre des grains du film et $f(V)\,dV$ la fraction de ce nombre dont le volume est compris entre V et $V + dV$.

On en déduit :

$$\langle M \rangle = \frac{n M_s^2 \langle V^2 \rangle}{3kT - W n M_s^2 \langle V^2 \rangle} B \qquad (6.8)$$

En reportant ces valeurs moyennes dans (6.6) et en faisant tendre B vers zéro, on obtient l'expression de la pente R'_1 de la tangente en $B = 0$ à la courbe $\rho_H(B)$ sous la forme :

$$R'_1 = \left[\langle R_0 \rangle + \langle R_1 \rangle \frac{n M_s^2 \langle V^2 \rangle}{3kT - W n M_s^2 \langle V^2 \rangle} \right] g(\alpha, \beta) \qquad (6.9)$$

en désignant par $g(\alpha, \beta)$ le terme en α et β de (6.6).

Selon la distribution statistique des volumes des grains du film, cette expression peut conduire à des valeurs de R'_1 très différentes de celles de $\langle R_1 \rangle$. Supposons $R'_1 >> R_1$, les variations de R'_1 avec la température, pour un film donné, seront déterminées essentiellement par le facteur en M_s^2 qui décroit constamment lorsque la température augmente. Cette hypothèse est donc en accord qualitatif avec les résultats expérimentaux de la figure 5.24.

Dans les champs intenses, on obtient de manière analogue [27]

$$\langle M \rangle = n M_s \langle V \rangle - \frac{n kT}{B_e} \qquad (6.10)$$

La courbe $\rho_H (B)$ a pour équation :

$$\rho_H = \left[\langle R_0 \rangle B - \langle R_1 \rangle \frac{n kT}{B_e} + \langle R_1 \rangle n M_s \langle V \rangle \right] g(\alpha, \beta) \qquad (6.11)$$

Le terme en $\frac{1}{B_e}$ de cette expression, considéré comme fonction de l'induction appliquée B, représente un arc d'hyperbole mais, compte tenu du fait que l'expression n'est valable que pour des valeurs élevées de l'induction, on peut assimiler cet arc d'hyperbole à un segment de droite et la courbe $\rho_H (B)$, obtenue expérimentalement, sera une droite. Si le numérateur du terme en $\frac{1}{B_e}$ est relativement important par rapport à R_0, la pente de cette droite diminue lorsque la température augmente ; ce qui est conforme aux résultats expérimentaux (figure 5.25).

Il est donc légitime d'assimiler la courbe d'équation (6.11) à sa tangente en un point. Soit B_o l'abscisse de ce point, posons :

$$B_0 + W \langle M (B_0) \rangle = C \qquad (6.12)$$

on obtient une droite de pente :

$$R'_0 = \left[\langle R_0 \rangle + \langle R_1 \rangle \frac{n kT}{C^2} \right] g(\alpha, \beta) \qquad (6.13)$$

et d'ordonnée à l'origine :

$$\left[\langle R_1 \rangle n \langle V \rangle M_s - 2 \langle R_1 \rangle \frac{n kT}{C} \right] g(\alpha, \beta) \qquad (6.14)$$

L'abscisse du point d'intersection de cette droite avec la tangente à l'origine de pente R'_1 donnée par (6.9) est :

$$B'_s = \frac{(C^2 M_s \langle V \rangle - 2C kT)(3kT - W n M_s^2 \langle V^2 \rangle)}{C^2 M_s^2 \langle V^2 \rangle - kT (3kT - W n M_s^2 \langle V^2 \rangle)} \qquad (6.15)$$

Cette relation montre que B'_s dépend surtout de la répartition statistique des volumes des grains du film. Si bien que la diminution rapide de B'_s avec l'épaisseur, que l'on observe en dessous de 200 Å (figure 5.12), ne doit pas être interprétée comme traduisant une diminution comparable de M_s. Il faut plutôt l'attribuer à des variations de la distribution statistique des grains avec l'épaisseur.

Cette conclusion est en accord avec les travaux de Neugebauer |51| et d'Hellenthal |25| relatifs à l'aimantation de films très minces.

En ce qui concerne la température de Curie, on peut montrer que l'aimantation moyenne $\langle M \rangle$ d'un film inhomogène s'annule pour une température T_A qui dépend de la répartition statistique des volumes des grains du film.

En effet, dans l'hypothèse où la température est assez élevée pour que l'aimantation $\langle M \rangle$ soit faible, celle-ci est encore donnée par la relation (6.8) car cela signifie que la fonction de Langevin, qui apparait dans (6.4), a une valeur faible donc, que l'on peut lui substituer le premier terme de son développement en série. Il résulte de (6.8) que $\langle M \rangle$ s'annule pour :

$$T_A = \frac{W\ n\ M_S^2\ \langle V^2 \rangle}{3k} \qquad (6.16)$$

Le raisonnement qui nous a conduit à la relation (6.8) étant formellement identique à la théorie du champ moléculaire de Weiss, nous en déduisons que pour $T < T_A$ le film sera ferromagnétique alors que pour $T > T_A$ il sera superparamagnétique. Ainsi, T_A apparait comme le point de Curie apparent du film qu'il faut distinguer du point de Curie T_C des grains qui constituent le film. T_C est la température à laquelle l'aimantation à saturation M_s d'un grain s'annule. La détermination de T_A, lorsque l'on connait W, n et $\langle V^2 \rangle$, doit être faite graphiquement car M_s est une fonction de la température qui, si l'on suppose les grains assez gros, obéit à la loi en $(T/T_C)^{3/2}$ du nickel massif.

Le fait que les films d'épaisseurs inférieures à 120 Å étudiés ici aient un comportement superparamagnétique laisse supposer que, pour ces films, T_A est inférieure à la température ambiante, ce qui semble en contradiction avec les résultats des mesures de la température de Curie, présentés au chapitre II, (figure 2.13) qui montrent qu'un film de 80 Å d'épaisseur possède une température de Curie de 320°C, inférieure de 11 % seulement à celle du nickel massif. Mais, la température de Curie, reportée sur la figure 2.13, a été déterminée en observant la variation de la résistance électrique des films en fonction de la température. Or, même dans les films inhomogènes, l'expression de la résistivité ne fait pas apparaitre explicitement l'aimantation globale $\langle M \rangle$ du film (l'effet de magnétorésistance est très faible |8|). Si bien qu'il me semble probable, que la température de Curie ainsi mesurée, est une moyenne $\langle T_C \rangle$ des températures de Curie réelles des grains. La faible diminution de $\langle T_C \rangle$, en dessous de 200 Å, étant due au fait qu'il existe dans le film, des grains très petits.

Dans cette hypothèse, le fait que la diminution de T_C avec l'épaisseur soit faible, confirme le caractère ferromagnétique des grains et par suite, le caractère superparamagnétique des films.

Un échantillon superparamagnétique ne présente pas, en principe, de phénomène d'hystérésis, ce qui est conforme aux observations faites sur des films d'épaisseurs inférieures à 100 Å (cf. § I.4 du chapitre V). Mais ceci n'est valable qu'à condition que le temps de relaxation soit petit par rapport à la durée des observations. S'il n'en est pas ainsi, si les grains sont trop gros, il doit apparaître un phénomène d'hystérésis. En particulier, si l'on a une substance formée de grains de diverses dimensions, il peut se faire que certains d'entre eux, les plus petits, participent au superparamagnétisme alors que les autres sont ferromagnétiques |61|. Il apparait alors une aimantation rémanente. C'est à ce mélange des caractères superparamagnétiques et ferromagnétiques qu'il faut attribuer, me semble-t-il, le phénomène d'hystérésis observé en mesurant la tension de Hall de lames d'une centaine d'angströms d'épaisseur (figure 5.5) qui présentent par ailleurs des caractères superparamagnétiques (figure 5.23).

Il existe donc un excellent accord qualitatif, entre les résultats expérimentaux présentés au chapitre V et relatifs à des films d'épaisseurs inférieures à 120 Å et l'hypothèse selon laquelle ces films sont superparamagnétiques c'est-à-dire qu'ils ont une structure granulaire ou tout au moins lacunaire, ce qui concorde fort bien avec leur résistance électrique élevée présentant un faible coefficient de température (cf. chapitre II).

II - *STRUCTURE MAGNETIQUE DES FILMS D'EPAISSEURS SUPERIEURES A 120 Å*

Les résultats expérimentaux présentés au chapitre précédent montrent :

a) que ces films possèdent une aimantation rémanente normale au plan de la couche, toujours dirigée dans le sens négatif de l'axe ox_3 (cf. figure 4.1), c'est-à-dire du dépôt vers le support.

b) que la susceptibilité en champs faibles possède deux valeurs distinctes χ' et χ'' selon, qu'antérieurement à la mesure considérée, le film a été aimanté à saturation dans la direction positive ou négative de l'axe ox_3.

c) que pour certaines valeurs de l'induction appliquée la susceptibilité différentielle est négative.

d) que pour certaines valeurs de l'induction appliquée les variations d'aimantation s'accompagnent d'un phénomène de trainage.

Nous nous proposons, dans ce paragraphe, de déterminer les caractéristiques magnétiques des films qui permettraient d'expliquer ces observations.

II.1 - *L'anisotropie perpendiculaire des films de nickel*

Dans un échantillon ferromagnétique, la distribution du vecteur aimantation, à chaque instant, est telle que l'énergie libre totale F de l'échantillon soit minimale. Celle-ci est la somme de plusieurs termes qui sont :

a) L'énergie d'échange F_e due à l'interaction à courte distance entre les spins d'atomes voisins. Elle ne dépend que de l'orientation relative des spins. Elle présente un caractère isotrope.

b) L'énergie d'anisotropie magnétocristalline qui résulte du fait qu'en l'absence de champ appliqué, l'aimantation $\vec{M}$ tend à s'orienter dans certaines directions privilégiées déterminées par la structure cristalline du matériau. Cette énergie est faible, si bien qu'en première approximation, on peut la négliger dans un échantillon polycristallin.

c) L'énergie F_H due au champ magnétique appliqué : $\vec{H}$.

d) L'énergie magnétostatique F_m due, au champ démagnétisant $\vec{H_d}$, qui résulte de la forme de l'échantillon et, éventuellement, au champ de dispersion qui existe lorsqu'il y a des fluctuations de l'aimantation d'un point à l'autre de l'échantillon.

e) L'énergie magnétostrictive, provenant du fait qu'une variation d'aimantation produit une déformation d'un cristal ferromagnétique et qu'inversement, des contraintes mécaniques provoquent des variations d'aimantation. Ce terme est,

en général, faible si les contraintes mécaniques ne sont pas importantes.

f) L'énergie de paroi qui dépend du nombre et du type des parois qui séparent les domaines.

Dans une couche mince, le champ démagnétisant qui apparait dès que l'aimantation s'oriente perpendiculairement au plan du film est élevé, si bien que l'énergie magnétostatique jouera un rôle important dans la détermination des conditions d'équilibre. Il en résulte qu'en l'absence de champ appliqué l'aimantation doit rester dans le plan du film. Or, ce n'est pas le cas. Il existe donc un mécanisme propre aux couches minces, qui s'ajoute à ceux énumérés ci-dessus. Il s'agit très vraisemblablement d'une anisotropie uniaxe dont l'axe de facile aimantation serait, ici, normal au plan du film. En effet, on observe pratiquement toujours, dans les films minces, la présence d'une anisotropie uniaxe qui se superpose à l'anisotropie magnétocristalline |40|. Les origines possibles de cette anisotropie sont multiples |40|, mais en ce qui concerne des films de nickel pur, déposés sous incidence normale et sans champ magnétique appliqué pendant le dépôt, c'est le cas des films étudiés ici, il semble que l'on puisse attribuer cette anisotropie à un effet magnétostrictif |18| |19| |43| |53|.

Les films de nickel étudiés ici ont été déposés sur des supports en verre "vycor" dont le coefficient linéaire de dilatation thermique est de $8\ 10^{-7}/°C$. Il est environ 16 fois plus petit que celui du nickel massif ($1{,}33.10^{-5}/°C$) et si on admet qu'à la température de dépôt, toujours supérieure à la température ambiante (cf. chapitre II), le film qui se forme est libre de toute contrainte mécanique, il n'en sera plus de même après refroidissement du support. Le film étant fortement lié au support, dès que celui-ci se refroidit la différence entre les coefficients linéaires de dilatation thermique provoque des tensions dans le film. En fait, il existe d'autres causes de tensions dans un film, l'expérience ayant montré que les tensions mesurées sont supérieures à celles qui résultent du mécanisme précédent |30|. Ces tensions sont, en première approximation, réparties de façon isotrope dans le plan du film et si l'on admet que la magnétostriction d'un échantillon polycristallin de nickel est également isotrope, il en résulte, étant donné que le coefficient de magnétostriction du nickel est important et négatif, une anisotropie dont l'axe de facile aimantation est perpendiculaire au plan du film. Si on désigne par σ la grandeur de la tension en un point donné, par λ_s la valeur moyenne du coefficient de magnétostriction ($\lambda_s = -\ 3410^{-6}$ dans Ni massif), la densité d'énergie d'anisotropie est :

$$f_A = -\frac{3}{2}\lambda_s\,\sigma\,\sin^2\theta \qquad (6.17)$$

θ étant l'angle que fait le vecteur aimantation au point donsidéré avec l'axe de facile aimantation.

On pose :

$$K_{\perp} = -\frac{3}{2}\lambda_s \sigma \qquad (6.18)$$

$K_{\perp}$ s'appelle la constante d'anisotropie perpendiculaire ; c'est un nombre positif.

La distribution de l'aimantation dans un film mince de nickel résulte donc essentiellement de la compétition entre l'énergie d'anisotropie précédente et l'énergie magnétostatique provenant des effets démagnétisants de surface.

Le calcul de cette distribution d'aimantation ne peut être mené à bien sans poser quelques hypothèses simplificatrices. Différentes approches ont été tentées |6| |33| |53| mais dans toutes, on suppose, pour simplifier les expressions mathématiques, que la composante de l'aimantation située dans le plan du film reste, en l'absence de champ appliqué, parallèle à une direction donnée. On prend l'un des axes du trièdre de référence, l'axe ox_2 par exemple, parallèle à cette direction, l'axe ox_3 est perpendiculaire au plan du film (cf. figure 4.1). Ceci conduit, en l'absence de champ appliqué, à une configuration de domaines en rubans. Les parois qui séparent les domaines sont toutes parallèles à la direction ox_2 et les domaines ont tous la même largeur D. L'angle ϕ que fait le vecteur aimantation avec le plan du film oscille entre deux valeurs $+\phi_0$ et $-\phi_0$ avec une période égale à 2D, la direction de sa composante suivant ox_2 tournant de 180° lorsque l'on passe d'un domaine au domaine adjacent. De telles géométries rubannées ont été effectivement observées |6| |32| |44| |53|.

La valeur de ϕ_0 dépend de la grandeur de la constante d'anisotropie $K_{\perp}$ et de l'épaisseur du film :

Si $\frac{2\mu_0 K_{\perp}}{M_s^2} < 1$, il existe une épaisseur critique de l'ordre de quelques milliers d'Angströms au dessousde laquelle $\vec{M}$ reste dans le plan du film ($\phi_0 = 0$), au dessus de laquelle $\vec{M}$ fluctue avec une période D et un angle ϕ_0 qui augmentent avec l'épaisseur. Dans les films très épais (au dessus de 1µ) ϕ_0 devient égal à $\frac{\pi}{2}$: on retrouve une configuration prévue par Kittel |35|.

Si $\frac{2\mu_0 K_{\perp}}{M_s^2} = 1$, l'énergie présente deux minima pour chaque épaisseur, l'un correspond à une géométrie périodique, l'autre à une géométrie non périodique.

Si $\frac{2\ \mu_0\ K_\perp}{M_s^2} > 1$, la structure rubannée est toujours favorisée sauf à la limite des très faibles épaisseurs.

Dans tous les cas l'angle ϕ_0 est d'autant plus grand que, pour une épaisseur donnée, le rapport $\frac{2\ \mu_0\ K_\perp}{M_s^2}$ est plus grand. Il est toujours proche de $\frac{\pi}{2}$ pour $\frac{2\ \mu_0\ K_\perp}{M_s^2} > 1$.

En conséquence, dans les films étudiés ici dont l'épaisseur est toujours inférieure à 1 000 Å, il faut supposer $\frac{2\ \mu_0\ K_\perp}{M_s^2} > 1$ pour que le vecteur aimantation puisse s'orienter normalement au plan du film en l'absence de champ magnétique appliqué. Ceci conduit, compte tenu de (6.17), à supposer l'existence de tensions supérieures ou égales à $2{,}8\ 10^9$ Pa soit, trois fois au moins, la valeur moyenne des tensions mesurées dans les films de nickel à la température ambiante |30|.

Des tensions aussi importantes semblent peu probables mais, même si on admet qu'elles existent, la théorie précédente n'explique pas pour autant la présence de l'aimantation rémanente observée. En effet, elle prévoit une distribution périodique de l'aimantation ce qui conduit à une aimantation moyenne nulle pour l'échantillon.

Cette théorie néglige toute possibilité de variation de la direction d'aimantation dans l'épaisseur du film. Mais une telle variation parait également peu probable dans des films aussi minces que ceux étudiés ici |35|. Il reste bien sûr que les spins de surface ne sont pas soumis aux mêmes actions que ceux de l'intérieur |47| |36| en particulier sur la surface en contact avec le support mais, ce phénomène est limité aux couches atomiques superficielles et ne devrait pas influencer notablement les propriétés des films de quelques centaines d'Angströms d'épaisseur.

En fait, la théorie précédente repose sur un modèle idéalisé de couche mince. Elle néglige notamment l'influence des irrégularités de tension et des défauts de structure du film. Ces imperfections entrainent des fluctuations locales de la direction et de la grandeur de l'aimantation à l'intérieur de chaque domaine. Il en résulte l'apparition, à l'intérieur de l'échantillon, de masses magnétiques fictives avec une densité volumique :

$$\rho = - \operatorname{div} \vec{M} \qquad (6.19)$$

Ces masses magnétiques créent un champ de dispersion $\vec{H}_m$ qui dérive du potentiel scalaire magnétique V^* donné par l'équation de Poisson

$$\Delta V^* = -\frac{1}{\mu_0} \operatorname{div} \vec{M} \qquad (6.20)$$

et Néel |40| a montré que ce champ de dispersion jour un rôle essentiel dans la détermination du champ coercitif donc de l'énergie des parois d'un échantillon ferromagnétique.

L'introduction de ce champ de dispersion dans la théorie précédente conduit à des calculs inextricables. Aussi allons nous utiliser un modèle plus élémentaire qui permet de retrouver qualitativement l'essentiel des résultats de la théorie précédente, ce qui autorise à penser que les autres conclusions que nous en tirerons auront également une valeur qualitative.

II.2 - *Caractéristiques magnétiques statiques des films*

Nous admettrons que l'on peut traiter le film comme un monodomaine soumis à un champ magnétique effectif qui serait la somme du champ appliqué $\vec{H}$ et d'un champ $\vec{H}_m$ qui dérive d'un potentiel défini par (6.20). Pour déterminer ce potentiel on tient compte de toutes les fluctuations d'aimantation c'est-à-dire, de celles provenant des imperfections du film et de celles résultant du fait que la direction moyenne d'aimantation varie d'un point à l'autre du film (cf. § précédent). Le champ $\vec{H}_m$ est donc une fonction des coordonnées du point considéré dans l'échantillon. Nous admettrons que les fluctuations d'aimantation dans l'épaisseur du film sont négligeables, si bien que $\vec{H}_m$ est toujours dans le plan du film. La composante du vecteur aimantation située dans le plan du film sera donc, en chaque point, colinéaire à $\vec{H}_m$.

Dans cette étude, $\vec{H}$ est toujours porté par la normale au film. Il en résulte que si l'axe de facile aimantation est lui aussi perpendiculaire au plan du film, nous aurons seulement, pour chercher les conditions d'équilibre du vecteur aimantation, à considérer le problème dans le plan défini par $\vec{H}_m$ et la normale. Lorsque nous examinerons le cas où l'axe de facile aimantation est incliné par rapport à la normale nous supposerons également, pour simplifier, qu'il est situé dans ce plan.

Les notations sont celles de la figure 6.2. θ est l'angle du vecteur aimantation $\vec{M}$ avec la normale au film et ψ l'angle entre cette normale et l'axe facile.

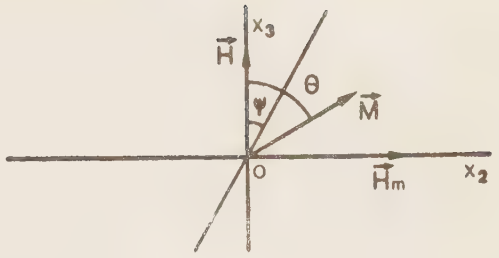


FIGURE 6.2

La densité d'énergie libre totale s'écrit :

$$f = - H M_s \cos \theta + K \sin^2 (\theta - \psi) + \frac{1}{2} \frac{M_s^2}{\mu_0} \cos^2 \theta - M_s H_m \sin \theta \qquad (6.21)$$

Le premier terme de cette somme représente l'énergie magnétique, le second l'énergie d'anisotropie, le troisième est l'énergie due aux charges magnétiques de surface : on suppose qu'il a la même forme que dans un monodomaine parfait (cf. chapitre IV) car on considère un élément de volume très petit et on néglige les fluctuations dans l'épaisseur du film. Le dernier terme est dû au champ de dispersion.

Les positions d'équilibre de $\vec{M}$ sont définies par les valeurs de θ qui sont solution de l'équation :

$$\frac{df}{d\theta} = 0 \qquad (6.22)$$

Les positions d'équilibre stable satisfont en outre à la condition :

$$\frac{d^2 f}{d\theta^2} > 0 \qquad (6.23)$$

Supposons l'axe facile perpendiculaire au plan du film c'est-à-dire $\psi = 0$ et $K = K_\perp$. En l'absence de champ appliqué les solutions de (6.22) sont soit, celles de :

$$\cos \theta = 0 \qquad (6.24)$$

soit, celles de :

$$\sin \theta = \frac{\mu_0 H_m}{2K_\perp - \frac{M_s^2}{\mu_0}} \qquad (6.25)$$

(6.24) conduit à $\theta = \pm \frac{\pi}{2}$, l'aimantation reste dans le plan du film.

(6.25) a deux solutions $\theta = \theta_0$ et $\theta = \pi - \theta_0$. Les positions correspondantes de $\vec{M}$ sont symétriques par rapport au plan du film.

La condition de stabilité (6.23) permet de montrer que, selon que $\frac{2 \mu_0 K_\perp}{M_s^2}$ est supérieur, inférieur ou égal à 1 et selon les valeurs de H_m, certaines de ces solutions seulement correspondent à des positions d'équilibre stables. On retrouve ainsi les résultats essentiels de la théorie du paragraphe précédent, à savoir que, lorsqu'un film présente une anisotropie perpendiculaire, le vecteur aimantation peut, en l'absence de champ appliqué et sous certaines conditions, sortir du plan du film. L'angle de $\vec{M}$ avec la normale au film est alors solution de (6.25).

Si H_m est une fonction périodique des coordonnées x_1, x_2 la distribution d'aimantation sera périodique et l'aimantation rémanente de l'échantillon, pris dans son ensemble, nulle. Mais, si H_m n'est pas périodique, on pourra observer une aimantation rémanente. Cependant, la condition de stabilité (6.23) montre que si l'une des solutions de (6.25) correspond à une position d'équilibre stable, l'autre solution, relative à la même valeur de H_m, correspondra également à une position d'équilibre stable. De telle sorte que si, après avoir aimanté l'échantillon normalement à son plan, à l'aide d'une induction positive par exemple, on annule l'induction appliquée, on observera une aimantation rémanente positive. Inversement, si l'induction appliquée avait été négative, l'aimantation rémanente serait négative. Ce qui n'est pas conforme aux observations expérimentales.

Supposons maintenant que l'axe d'anisotropie soit incliné par rapport à la normale d'un angle ψ inférieur à $\frac{\pi}{2}$. Si l'on suppose $H_m = 0$ (échantillon monodomaine parfait), l'équation (6.22) s'écrit, en l'absence d'un champ appliqué :

$$\operatorname{tg} 2\theta = \frac{K \sin 2\psi}{K \cos 2\psi - \frac{M_s^2}{2\mu_0}} \qquad (6.26)$$

équation qui admet deux solutions :

$$\theta = \theta_0 \quad \text{et} \quad \theta = \theta_0 + \frac{\pi}{2}$$

Seule la solution telle que $\psi < \theta < \frac{\pi}{2}$ correspond à une position d'équilibre stable.

Autrement dit, dans un monodomaine présentant un axe facile incliné par rapport à la normale, le vecteur aimantation, en l'absence de champ appliqué, ne peut s'orienter que dans l'une des deux directions opposées représentées sur la figure 6.3.

S'il existe un champ de dispersion H_m porté par ox_2, il est évident qu'une seule de ces deux positions sera une position d'équilibre stable : celle pour laquelle la composante M_2 de $\vec{M}$ sera de même sens que $\vec{H_m}$.

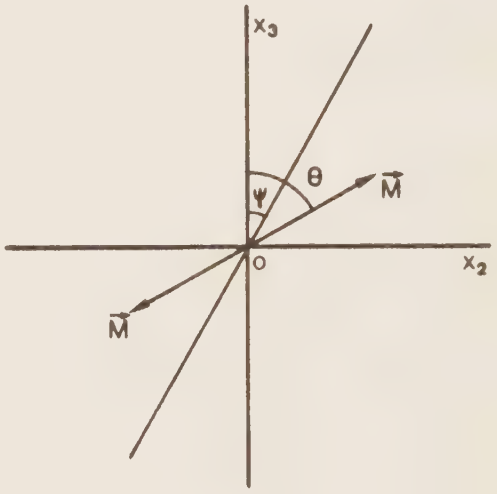


FIGURE 6.3

Si l'on suppose que H_m, en l'absence de champ appliqué, est indépendant du passé magnétique de l'échantillon et si le volume de l'échantillon en chaque point duquel $\vec{H_m}$ est dirigé dans le sens négatif de ox_2 est plus grand que le volume dans lequel $\vec{H_m}$ est orienté positivement, on observera une aimantation rémanente toujours négative. Ceci nous amène à conclure, que les films étudiés ici, possèdent un axe de facile aimantation incliné par rapport au plan du film.

L'origine de cet axe d'anisotropie peut être simplement rattachée à l'anisotropie de la magnétostriction dans le nickel. En effet, considérons un monocristal de nickel. Soit $\vec{u}$ un vecteur unitaire porté par la direction d'aimantation et $\vec{v}$ un vecteur unitaire porté par la direction de tension, l'énergie d'anisotropie magnétoélastique s'écrit, en prenant comme axes de références les axes cristallographiques |28| :

$$f_A = -\frac{3}{2}\lambda_{100}\,\sigma\,(u_1^2 v_1^2 + u_2^2 v_2^2 + u_3^2 v_3^2) - \frac{3}{2}\lambda_{111}\,\sigma\,(2u_1u_2\,v_1v_2 + 2u_2u_3\,v_2v_3 + 2u_1u_3\,v_1v_3) \qquad (6.27)$$

Or, les constantes de magnétostriction λ_{100} et λ_{111} du nickel sont notablement différentes ($\lambda_{100} = -5\ 10^{-5}$ et $\lambda_{111} = -2\ 10^{-5}$ dans le nickel massif), si bien que l'axe de facile aimantation, qui porte la direction d'aimantation pour laquelle l'énergie f_A est minimum, n'est pas perpendiculaire à la direction de tension, ainsi qu'on peut le vérifier à partir de l'expression (6.27).

Ainsi, dans un film polycristallin de nickel, il existe en chaque point un axe d'anisotropie dont la position dépend à la fois, des directions cristallographiques et des tensions internes. Il en résulte que la direction de facile aimantation varie d'un point à l'autre du film, ce qui crée des fluctuations de l'aimantation et, par suite, un champ de dispersion.

Si l'on considère la figure 6.4 et si l'on suppose que l'aimantation de l'échantillon se fait par rotation du vecteur aimantation, il apparait, intuitivement, que la susceptibilité magnétique est plus grande lorsque le champ appliqué $\vec{H}$ est positif que lorsqu'il est négatif.

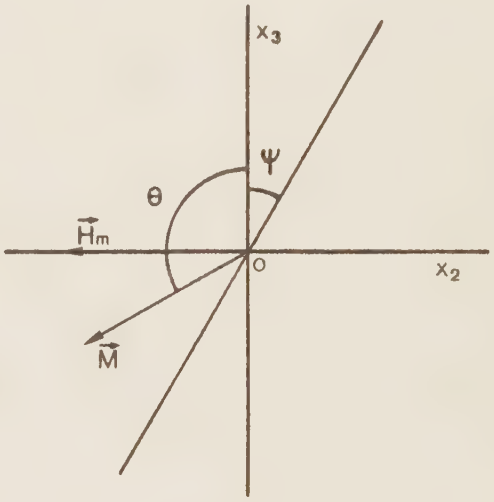


FIGURE 6.4

On pourrait d'ailleurs le démontrer en s'appuyant sur la théorie de Stoner et Wohlfarth |57| mais, l'expérience prouve que dans les films que j'ai obtenus, l'aimantation se fait essentiellement par déplacement des parois (cf. § 2 du chapitre V). Par suite, si le modèle précédent peut constituer une approximation valable pour l'étude des propriétés statiques des films il ne convient pas à l'étude de leurs propriétés dynamiques.

Il permet néanmoins de montrer que l'allure de la courbe V_2 (B) des figures 5.1 et 5.2 confirme l'existence d'un axe d'anisotropie incliné par rapport au plan du film.

En effet, supposons l'existence d'un tel axe. Que l'aimantation de l'échantillon, sous l'action d'un champ $\vec{H}$ appliqué suivant ox_3 et d'intensité croissante, se fasse par rotation cohérente ou par déplacement des parois, il arrivera un moment où, l'intensité du champ appliqué étant assez élevée, l'angle θ, en chaque point du film, sera assez petit pour que toutes les contributions à l'énergie, autre que celle provenant du champ appliqué, créent des forces qui tendent à

ramener le vecteur aimantation dans le plan du film. Cette condition sera réalisée dans le cas de la figure 6.4, par exemple, lorsque $|\theta| < \frac{\pi}{2}$ si H est positif et lorsque $|\theta| < |\psi|$ si H est négatif. Le comportenent du film dans des champs plus élevés sera alors semblable à celui d'un film isotrope, la normale au plan du film sera un axe de difficile aimantation et, en particulier, on n'observera aucun phénomène d'hystérésis. C'est effectivement ce que l'on constate sur les figures 5.1 et 5.2 lorsque l'induction appliquée est supérieure à l'abscisse B_2 du point Q.

Si l'axe facile était perpendiculaire au plan du film, le phénomène d'hystérésis ne disparaitrait que lorsque l'échantillon serait aimanté à saturation.

II.3 - *Caractéristiques magnétiques dynamiques des films*

Il résulte du paragraphe précédent que, dans les films que nous étudions, la grandeur et la direction de l'anisotropie varient d'un point à l'autre du film, même si les tensions internes sont réparties de manière isotrope. Or, cette dernière hypothèse n'est valable qu'en première approximation, en outre, il existe de nombreuses imperfections de structure, si bien qu'il parait évident que la distribution d'aimantation dans ces films est très compliquée. Néanmoins, compte tenu du fait que l'interaction d'échange tend à aligner les spins voisins, il existe des domaines. A l'intérieur de chaque domaine, il y a des fluctuations d'aimantation et ce sont ces fluctuations qui sont responsables du champ coercitif de déplacement des parois |49|.

En s'appuyant sur ces considérations très générales, il est possible d'interpréter les phénomènes observés dans les faibles champs de la façon suivante : Supposons, schématiquement, qu'il existe dans le film considéré, deux zones : la zone I, dans laquelle la direction moyenne de facile aimantation fait un angle notable avec le plan du film et la zone II, dans laquelle l'axe facile est très voisin de ce plan. Supposons en outre, qu'en chaque point de la zone I, la position d'équilibre du vecteur aimantation, en l'absence de champ appliqué, corresponde à la figure 6.4. Dans la zone II, le vecteur aimantation est alors dans le plan du film.

Lorsqu'on soumet l'échantillon à un champ extérieur $\vec{H}$, appliqué suivant la direction positive de ox_3, l'aimantation, dans la zone I, va tourner facilement et va tendre à s'orienter parallèlement à $\vec{H}$, alors que dans la zone II, elle sortira difficilement du plan du film. La susceptibilité magnétique globale du film, déterminée essentiellement par la zone I, sera importante. La variation

de la densité d'énergie libre sera plus importante, pour une valeur donnée de H, dans la zone I que dans la zone II. Il arrivera un moment où, du fait de la différence entre les énergies libres des deux zones, la pression exercée sur les parois qui les séparent sera suffisante pour provoquer le déplacement de celles-ci de manière à diminuer le volume de la zone où la densité d'énergie libre est la plus élevée.Or, du fait de l'importance de l'énergie d'anisotropie et de l'énergie magnétostatique ce ne sera pas nécessairement la zone où l'aimantation est la moins favorablement orientée par rapport au champ appliqué. De telle sorte que le déplacement des parois pourra se traduire par une diminution de l'aimantation globale du film. C'est ce que l'on observe expérimentalement (cf. figures 5.1 et 5.2).

Si le champ extérieur est appliqué suivant la direction négative de ox_3, l'aimantation dans les deux zones s'orientera difficilement hors du plan du film. La susceptibilité globale du film sera faible. Il en résulte que les variations de l'énergie libre dans chaque zone seront essentiellement dues au terme provenant du champ appliqué si bien que, lorsque les parois se déplaceront, c'est la zone où le vecteur aimantation est favorablement orienté par rapport au champ extérieur qui augmentera de volume ce qui est conforme aux observations expérimentales (cf. figures 5.1 et 5.2).

Cette séparation du film en deux zones seulement, constitue évidemment une simplification exagérée de la structure du film. Il existe probablement plusieurs zones, la direction de facile aimantation variant considérablement d'une zone à l'autre. D'autre part il peut exister plusieurs configurations en zones qui correspondent à la même valeur de l'énergie libre globale de l'échantillon ce qui explique l'hystérésis observée sur les courbes V_2 (B) des figures 5.1 et 5.2.

La valeur de l'induction appliquée, pour laquelle se produit le déplacement des parois de zones, correspond à l'abscisse B_1 des points P et P' sur les figures 5.1 et 5.2. Elle est liée à la grandeur du champ coercitif de déplacement des parois mais elle n'est pas une mesure de ce champ, qui est défini dans une direction perpendiculaire au déplacement des parois c'est-à-dire, ici, dans le plan du film.

Les figures 5.8 et 5.9 montrent que pour $B < B_1$, il se produit des déplacements de parois. Ceci signifie qu'à l'intérieur de chaque zone il y a des fluctuations de la direction d'anisotropie qui font que la zone est elle même subdivisée en domaines. Mais le champ coercitif de déplacement des parois qui séparent ces domaines est beaucoup plus faible que celui des parois de zones cas les variations de la direction d'anisotropie d'un domaine à l'autre sont beaucoup plus faibles que celles qui existent d'une zone à l'autre.

La séparation d'un film en plusieurs zones peut trouver son origine dans les conditions de préparation des films. En effet, lorsque l'on dépose un film par sublimation sous vide, la surface du support qui reçoit le dépôt est chauffée par le rayonnement du sublimateur et parce que l'énergie de sublimation qu'il a fallu fournir au métal à déposer est transmise instantanément au support par l'atome métallique qui se dépose |4|.

Or, si des électrodes métalliques ont été déposées sur la surface du support préalablement au film à étudier, la chaleur reçue par le support pendant le dépôt du film sera évacuée plus rapidement au voisinage de ces électrodes qu'ailleurs, si bien que la température de la surface qui reçoit le dépôt ne sera pas homogène. Il en résulte que les tensions induites dans le film seront, près des électrodes de mesures, différentes de ce qu'elles seront au centre du film. Ceci peut expliquer l'existence de zones à anisotropies différentes.

Cette influence considérable des tensions internes et de la magnétostriction sur les propriétés magnétiques des films permet d'expliquer :

a) L'influence du recuit qui, en réduisant l'importance des irrégularités de tension et le nombre des imperfections, diminue l'importance des anomalies magnétiques observées (cf. § I.2 du chapitre V).

b) L'influence de l'épaisseur. Les tensions internes induites par le support n'ont d'importance que pour les premières couches déposées, de telle sorte que les anomalies tendent à disparaitre lorsque l'épaisseur augmente (cf. § I.3 du chapitre V).

c) L'influence de la température. L'expérience montre que les tensions internes diminuent lorsque la température augmente |30|, de même que les coefficients de magnétostriction |28| si bien qu'au dessus de 250°C, même s'il existe des contraintes, la magnétostriction est suffisamment faible pour que les films paraissent isotropes. Les anomalies magnétiques observées disparaissent (cf.§ I.5 du chapitre V).

II.4 - *Le phénomène de trainage*

J'ai déjà signalé au chapitre V que la variation importante d'aimantation qui, sur les figures 5.1 et 5.2, fait passer le point représentatif de P en Q ou de P' en Q', s'accompagne d'un phénomène de trainage que l'on observe de la manière suivante : L'induction appliquée ayant la valeur B_1, il existe

Temps en secondes
1
2
5
10
2
5
10²
2
5
10³
ΔV₂ en µV
10
20
30
0,1 T
0,11 T
0,112 T
t∞

FIGURE 6.5

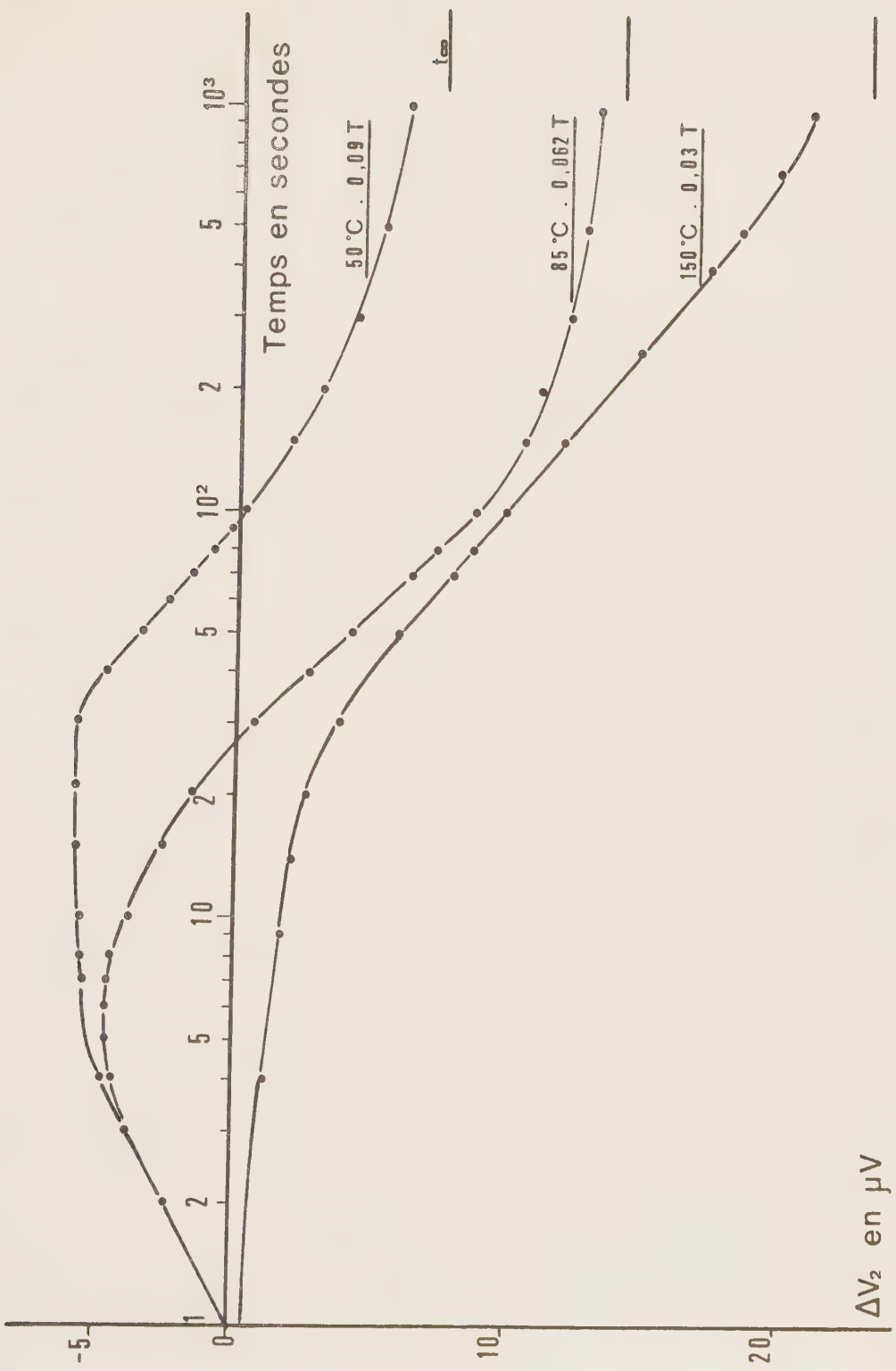

Temps en secondes
1
2
5
10
2
5
10²
2
5
10³
-5
0
10
20
ΔV₂ en μV
50°C . 0,09 T
85°C . 0,062 T
150°C . 0,03 T
t∞

FIGURE 6.6

entre les sondes de Hall une tension $V_2 (B_1)$ qui correspond à l'ordonnée du point P de la figure 5.1 par exemple. A l'instant $t = 0$ on applique une induction de valeur $B = B_1 + \delta B$. On constate alors que la tension $V_2 (B)$ diminue lentement et tend, au bout de plusieurs minutes, vers une limite $V_2 (B_1 + \delta B)$ définie et reproductible, c'est-à-dire que si l'on répète plusieurs fois l'expérience, en donnant à δB la même valeur, $V_2 (B)$ tend, dans le même temps, vers la même limite. J'ai représenté sur la figure 6.5 la quantité :

$$\Delta V_2 (t) = V_2 (B_1) - V_2 (B, t)$$

en fonction du logarithme du temps, à la température ambiante et pour diverses valeurs de $B = B_1 + \delta B$. Il s'agit des mesures faites sur une lame de 200 Å d'épaisseur, mais le phénomène conserve la même allure quelle que soit l'épaisseur, pourvu qu'elle soit comprise entre 120 Å et 800 Å. On constate que l'amplitude de la variation $\Delta V_2 (\infty)$ et la vitesse de variation $\frac{d (\Delta V_2)}{dt}$ sont d'autant plus importantes que B, donc δB, est plus grand.

Lorsque $B > B_2$ (B_2 est l'abscisse du point Q sur la figure 5.1), la variation est instantanée et le point représentatif de coordonnées B et $V_2 (B)$ se place exactement sur la branche QS de la courbe de la figure 5.1.

La figure 6.6 représente $\Delta V_2 (t)$ en fonction du logarithme du temps pour la même lame et pour diverses températures. Etant donné que B_1 et $V_2 (B_1)$ sont également des fonctions de la température, les valeurs de B pour lesquelles il y a trainage varient avec la température et il est difficile d'établir une comparaison entre les différentes courbes. Néanmoins, il semble que la durée du phénomène soit peu influencée par la température sauf au voisinage de 250°C, température à laquelle le phénomène disparait totalement comme toutes les anomalies observées dans mes films.

Puisque ce phénomène n'est observable que pour $B_1 < B < B_2$ il est associé au déplacement des parois qui séparent les zones définies au paragraphe précédent. On ne peut pourtant le classer ni dans l'une ni dans l'autre des deux catégories de trainages magnétiques distinguées par Néél [50] dans les matériaux massifs : Il ne peut être attribué ni à la diffusion d'impuretés à l'intérieur du réseau cristallin étant donné les conditions de vide dans lesquelles ces études ont été faites, ni aux seules fluctuations thermiques du vecteur aimantation puisque, notamment, la tension $V_2 (B)$ tend, pour une valeur donnée de B, vers une limite bien déterminée lorsque le temps augmente indéfiniment.

Le mécanisme le plus plausible qui rende compte des observations précédentes fait cependant intervenir les fluctuations thermiques de l'aimantation des grains du film si l'on suppose celui-ci inhomogène |47||12|. On peut décrire formellement ce mécanisme de la manière suivante : Considérons une paroi plane, P, susceptible de se déplacer en restant parallèle à elle-même. Comme elle a une certaine largeur, on repère ses déplacements par l'abscisse x de son plan de symétrie sur un axe ox, parallèle à la direction de son déplacement.

A chaque instant, la position de la paroi est telle que l'énergie libre totale F de l'échantillon soit minimale. Si, en faisant varier le champ appliqué, on modifie la valeur de l'énergie libre totale, il en résulte des forces de pression qui s'exercent sur la paroi pour l'amener dans une nouvelle position, qui correspond à un nouveau minimum de F. Mais, il existe des forces résistantes qui s'opposent au déplacement de la paroi. Nous admettrons avec Néel |49| que ces forces dérivent d'un potentiel W qui varie irrégulièrement avec x du fait des défauts de structure et des irrégularités de tension (figure 6.7).

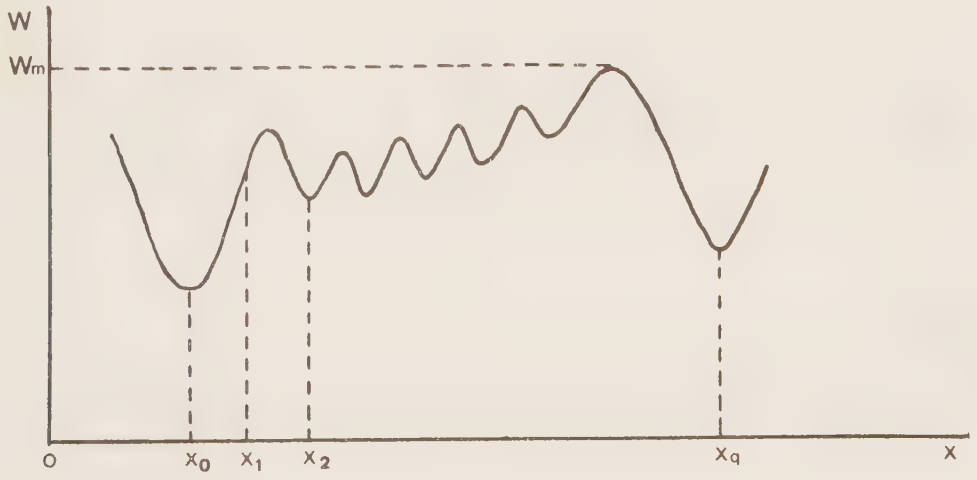


FIGURE 6.7

En l'absence de champ appliqué la paroi est dans la position x_o qui correspond à un minimum de son énergie potentielle. Si on applique un champ H tel que l'énergie de pression qui en résulte soit supérieure à W_m, la paroi va se déplacer très rapidement jusqu'au point x_q qui correspond à un nouveau minimum de F. On observera une variation de l'aimantation globale de l'échantillon.

Si, au contraire, l'énergie de pression est faible, la paroi se déplacera seulement jusqu'en x_1. Le déplacement est infiniment petit et la variation de l'aimantation globale de l'échantillon qui en résulte n'est pas décelable.

Mais supposons que, par suite des fluctuations thermiques de l'aimantation, l'énergie libre totale F fluctue constamment autour de sa valeur moyenne. Il en est de même de l'énergie de pression. Si bien que si, en présence d'un champ H, la paroi est dans une position x_1 assez proche du premier maximum de W, il peut se faire que, du fait des fluctuations thermiques, elle franchisse la barrière de potentiel qui sépare x_1 et x_2. Soit P (H) dt la probabilité pour que cela se produise pendant l'intervalle de temps dt ; P (H) dt sera donc la probabilité pour que, dans l'intervalle de temps dt, la paroi se déplace d'une distance :

$$\ell = x_2 - x_1 \qquad (6.28)$$

Supposons, pour simplifier, que toutes les barrières de potentiel de ce genre, que rencontre la paroi, au cours de son déplacement de x_o en x_q, aient, en présence du champ H, la même hauteur et la même largeur ℓ. La vitesse de déplacement de la paroi sera :

$$v = \ell \, . \, P\,(H) \qquad (6.29)$$

Il va de soi que plus H sera grand, plus la hauteur des barrières de potentiel que pourra franchir la paroi sera grande. Par conséquent l'amplitude du déplacement total de la paroi et donc celle de la variation de l'aimantation globale seront aussi plus grandes.

Pour qu'un tel mécanisme puisse exister il faut que le temps de relaxation des fluctuations thermiques d'aimantation soit suffisamment petit par rapport à la durée des mesures. Ceci se produit lorsque l'échantillon peut être, du point de vue magnétique, considéré comme une collectivité de particules monodomaines |47|.

Supposons qu'il en soit ainsi et supposons aussi que la paroi dont il est question ci-dessus soit une paroi à 180°. Pour la déplacer d'une distance ℓ, il faut fournir l'énergie nécessaire pour retourner l'aimantation de tous les grains qui se trouvent à l'intérieur du volume balayé par la paroi au cours de son déplacement.

Or, si H_c est le champ coercitif d'un grain de volume V, présentant une anisotropie uniaxe, l'énergie qu'il faut fournir pour renverser son aimantation est :

$$f_c = \frac{1}{2} M_s H_c V \qquad (6.30)$$

Le temps de relaxation τ d'un tel grain est, en l'absence de champ appliqué, donné par la relation |47| :

$$\frac{1}{\tau} = \nu_0 \exp\left(-\frac{V M_s H_c}{2kT}\right) \qquad (6.31)$$

k est la constante de Boltzman, T la température absolue et ν_0 une quantité qui dépend de V, H_c et de la nature du matériau qui constitue le grain.

Il en résulte que la probabilité pour que, en l'absence de champ appliqué, le renversement d'aimantation du grain se produise spontanément pendant le temps dt est :

$$p(o)\, dt = \frac{dt}{\tau} \qquad (6.32)$$

Si on applique un champ H, parallèle à l'axe d'anisotropie du grain, on fournit l'énergie

$$f_h = - V M_s H \qquad (6.33)$$

La probabilité $p(H)\, dt$ pour que les fluctuations thermiques provoquent le renversement de l'aimantation du grain pendant l'intervalle de temps dt est alors :

$$p(H)\, dt = \nu_0\, dt \exp\left(-\frac{(H_c - 2H)}{2kT} M_s V\right) \qquad (6.34)$$

Dans le cas d'une paroi à 180°, le plan de symétrie de la paroi est parallèle à l'axe d'anisotropie des grains. ℓ est la dimension moyenne des grains dans la direction ox et $P(H)$ apparait comme une moyenne de $p(H)$ prise sur tous les grains situés dans la bande de largeur ℓ contigüe à la paroi. Cette moyenne doit être calculée en tenant compte des interactions magnétiques entre les grains.

En fait, dans les films étudiés ici, la paroi qui sépare deux zones n'est pas nécessairement une paroi à 180° car, l'angle α que forment

les directions moyennes d'aimantation dans les deux zones, dépend étroitement de l'angle fait par les directions de facile aimantation. Il en résulte que pour déplacer la paroi, il suffit de fournir l'énergie nécessaire pour faire tourner de α la direction moyenne d'aimantation des grains de la bande de largeur ℓ. D'autre part, le champ appliqué H est ici perpendiculaire à la fois à la paroi et à la direction de propagation. Par suite, les énergies qui interviennent dans le mécanisme précédent ne seront pas représentées par des expressions aussi simples que les relations (6.30) et (6.33).

Nous admettrons néanmoins que la vitesse de propagation d'une paroi peut s'exprimer par la relation :

$$v = C \exp\left(\frac{G\,(H - H_p)}{kT}\right) \qquad (6.35)$$

C et G dépendent notamment du volume et de la forme des grains ainsi que de l'angle que fait, en chaque point, le vecteur aimantation avec le plan du film. Nous admettrons que pour un film donné, à une température donnée, C et G peuvent être traités comme des constantes.

H est le champ appliqué, il est dirigé suivant la normale au plan du film et H_p est un champ fictif qui, s'il était appliqué normalement au plan du film, créerait une résistance au déplacement des parois identique à celle qui existe réellement.

Tant que $H \ll H_p$, l'énergie d'agitation thermique n'est pas suffisante pour faire franchir à la paroi les barrières de potentiel. La paroi est bloquée dans la position qu'elle occupait lorsque H était nul.

Lorsque H est voisin de H_p mais inférieur à H_p, la paroi se déplace avec une vitesse d'autant plus grande que la différence $H_p - H$ est plus petite.

Lorsque $H > H_p$ la vitesse de propagation de paroi devient très grande. Les variations d'aimantation de l'échantillon paraissent instantanées.

Ainsi, dans mes films, H_p est lié à l'abscisse B_2 du point Q de la figure 5.1 par la relation :

$$B_2 = \mu_0 H_p \qquad (6.36)$$

H_p peut être considéré comme le champ coercitif de déplacement des parois lorsque le champ appliqué est perpendiculaire à la fois aux parois et à la direction de déplacement.

Remarquons, qu'une relation exponentielle entre la vitesse de déplacement des parois et la différence $H_p - H$, explique fort bien l'étroitesse du domaine des valeurs de l'induction pour lesquelles on observe un phénomène de trainage : La différence $B_2 - B_1$ n'excède, en effet, jamais 0,02 T dans mes mesures.

Mais la relation (6.35) prévoit également que la vitesse de déplacement des parois dépend exponentiellement de la température. En fait, H_p décroit rapidement avec la température comme on peut le constater sur la figure 5.7 (étant donné l'échelle de la figure la courbe B_2 (T) est pratiquement confondue avec la courbe B_1 (T) pour chaque film). D'autre part C et G, qui dépendent des caractéristiques magnétiques statiques des films, sont aussi fonction de la température. Si bien que les variations de v en fonction de T ne sont pas exponentielles et il n'y a pas de contradiction entre les résultats expérimentaux de la figure 6.6 et la formule (6.35).

Si l'on ne décèle pas de phénomène de trainage associé au déplacement des parois qui, dans mes films, séparent les domaines à l'intérieur de chaque zone, cela est probablement dû au fait que la dispersion de l'axe d'anisotropie à l'intérieur de chaque zone est faible, de telle sorte que, pour ces parois, H_p est faible, et la différence $H_p - H$ pour laquelle on pourrait observer un trainage n'excède vraisemblablement pas quelques 10^{-4} T.

II.5 - *Conclusion*

Il apparait que les films de nickel que j'ai obtenus, par sublimation sous $5\ 10^{-10}$ Torr mais avec une vitesse de dépôt très faible, possèdent une structure magnétique très différente de celles que laissent prévoir les travaux de Kittel [34] ou les théories plus élaborées présentées dans le paragraphe II.1.

Si les effets démagnétisants de surface ont effectivement un rôle essentiel dans l'interprétation des propriétés magnétiques observées, leur importance est contre-balancée par celle des effets dus aux tensions internes et aux imperfections du film. Ce résultat n'a rien d'étonnant puisque Néél [49] a montré depuis longtemps que les défauts de structure et les tensions internes

influençaient considérablement les propriétés des échantillons ferromagnétiques massifs et en particulier celles du nickel. Or, on sait également depuis longtemps, que la densité des défauts et la grandeur des tensions sont beaucoup plus élevées dans les couches minces que dans les échantillons massifs.

Remarquons d'ailleurs que les défauts de structure sont si nombreux que les films présentent des caractères superparamagnétiques (trainage) tant que leur épaisseur est inférieure à 800 Å. C'est-à-dire que, jusqu'à un certain point, les films d'épaisseur inférieure à 800 Å doivent être considérés comme formés de particules de quelques centaines d'Angströms de diamètre.

III - *EFFET HALL "AIMANTATION"*

III.1 - *Evaluation de l'aimantation spontanée et calcul de* R_1

Nous avons vu au paragraphe IV.1 du chapitre V que, pour déterminer, aux températures inférieures à 250°C, le coefficient de Hall "aimantation" R_1 des films de nickel, il était nécessaire de connaitre l'aimantation à saturation M_s de l'échantillon.

Pour évaluer M_s, reprenons les résultats de la figure 5.20 et comparons la courbe représentant B'_s en fonction de la température, pour une lame de 650 Å d'épaisseur par exemple, avec la courbe représentant M_s (T) pour le nickel massif. On constate que ces deux courbes coïncident à peu près, entre 250°C et 300°C. Ceci s'explique si l'on considère qu'au dessous de 250°C, B'_s et M_s sont liés par la relation :

$$B'_s \simeq \frac{1 + \mu_0 N' \chi'}{\chi'} M_s \qquad (5.15)$$

χ' est la susceptibilité magnétique à la rémanence. Sa valeur dépend des déplacements des parois, si bien qu'elle sera d'autant plus petite que les irrégularités, qui freinent le déplacement des parois, seront plus nombreuses. Il en résulte, compte tenu de l'analyse du paragraphe précédent, que χ' est une fonction de la température qui ne prendra une valeur du même ordre de grandeur que dans les échantillons massifs, qu'au dessus de 250°C. χ' est alors très grand et on peut écrire :

$$B'_s \simeq M_s$$

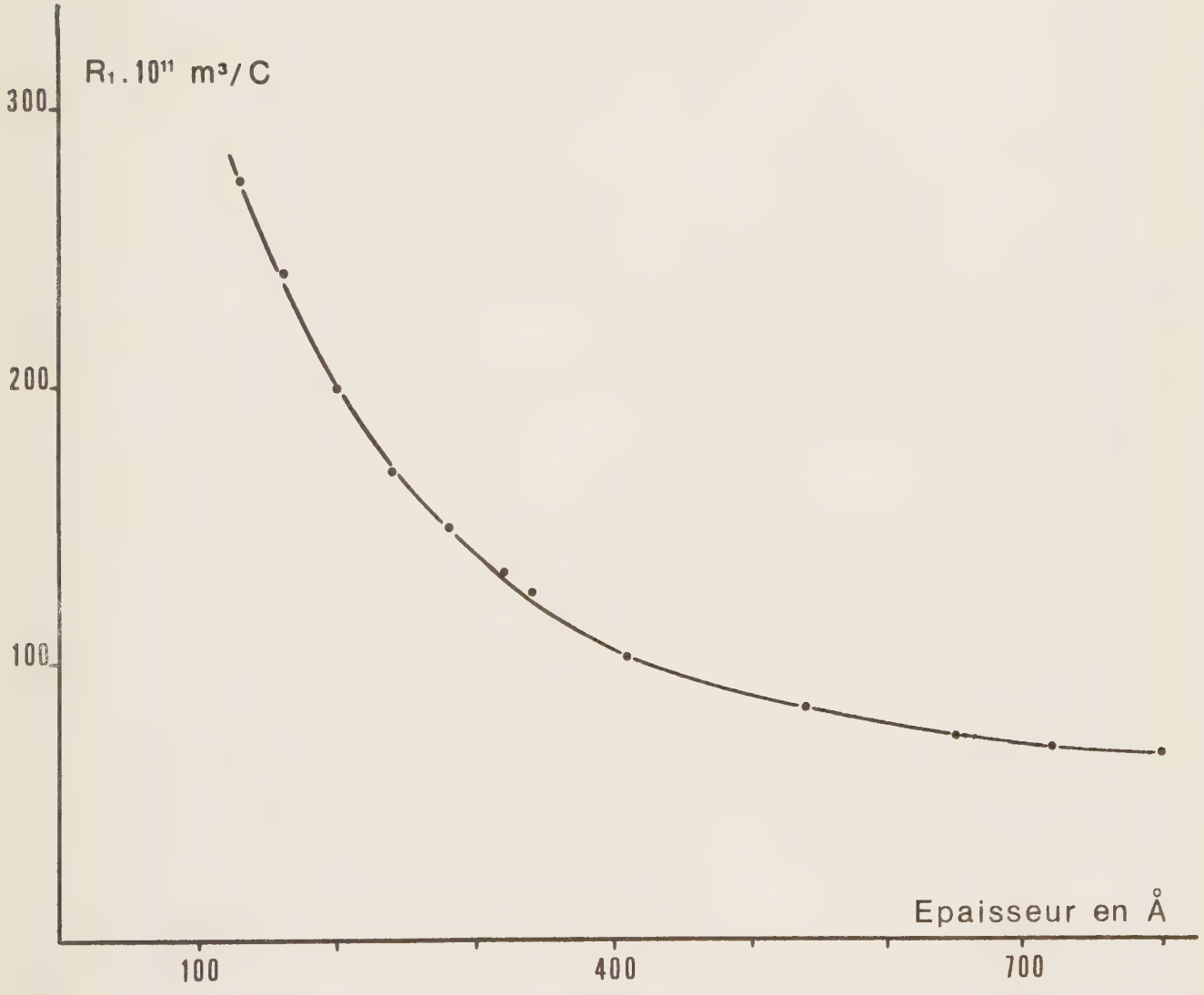


FIGURE 6.8

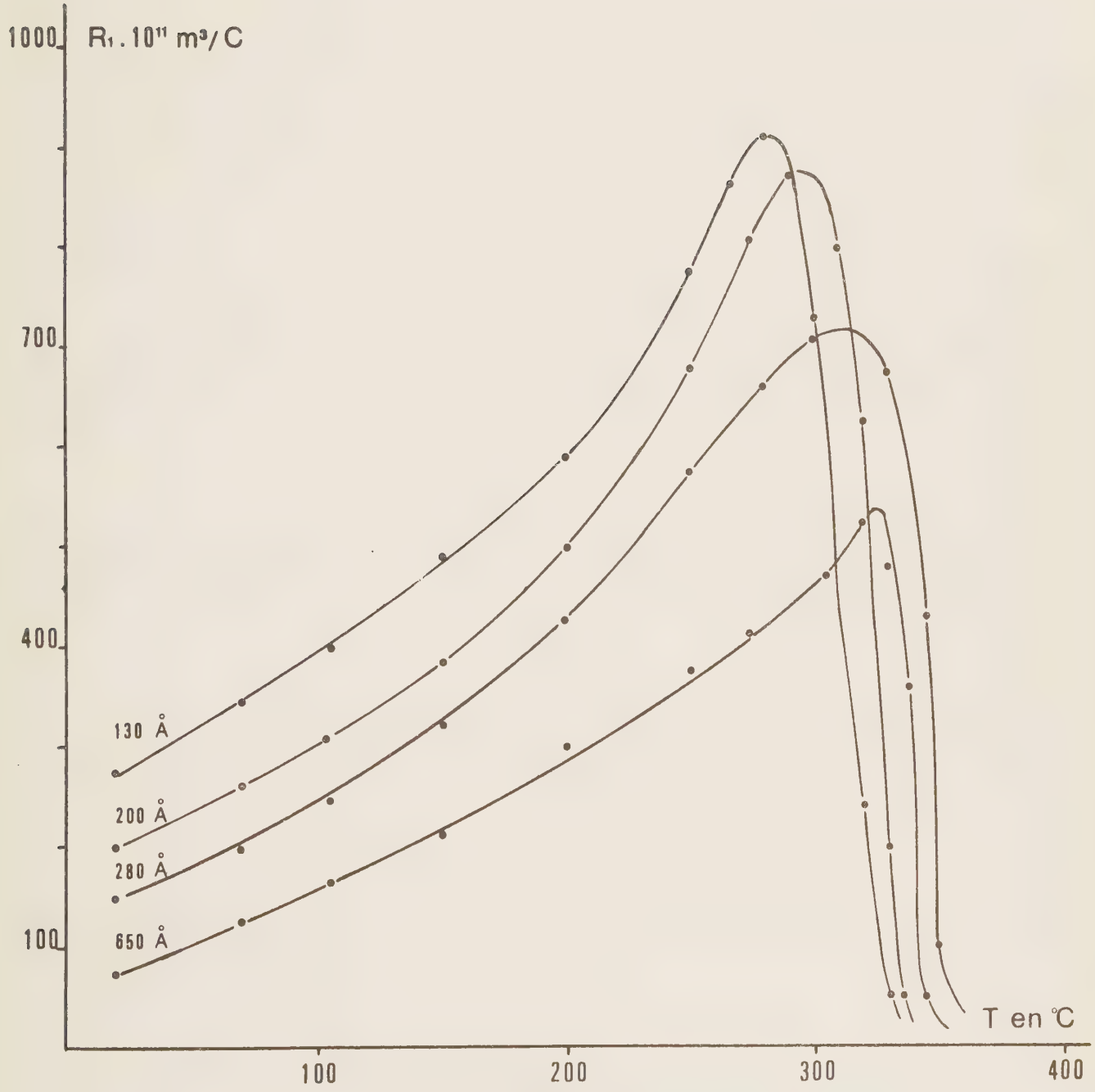

1000
$R_1 . 10^{11}$ m³/C
700
400
100
130 Å
200 Å
280 Å
650 Å
T en °C
100
200
300
400

FIGURE 6.9

Ainsi, il semble vraisemblable d'admettre que les films de nickel possèdent la même aimantation à saturation que le nickel massif.

En fait, il résulte des travaux théoriques de Corciovei que la présence d'une anisotropie uniaxe, perpendiculaire au plan du film, entraine une diminution de l'aimantation à saturation et de la température de Curie des films, même très épais |10|; alors qu'une anisotropie d'axe facile parallèle au plan du film, tend à conserver à ces quantités les valeurs qu'elles ont dans le métal massif |11|. Dans les films étudiés ici, l'axe de facile aimantation est incliné par rapport au plan du film, si bien que l'on peut séparer le champ d'anisotropie $H_A = \frac{2K}{M_s}$ en deux composantes, l'une perpendiculaire au plan du film, l'autre parallèle à ce plan, dont les effets sur l'aimantation se compensent plus ou moins suivant l'angle que fait l'axe facile avec le plan du film. Ceci, joint au fait que la température de Curie mesurée est du même ordre de grandeur que celle du métal massif (cf. figure 2.13), m'amène à conclure qu'il est tout à fait plausible d'admettre que mes films possèdent la même aimantation à saturation que le nickel massif.

Le fait qu'au dessus de 300°C, les valeurs de M_s (T) soient supérieures à celles de B'_s (T) peut être attribué à l'augmentation de la susceptibilité magnétique en champs intenses χ_s, dans ce domaine de températures. En effet, nous avons vu que, quelle que soit la température (cf § III.2 du chapitre V) :

$$B'_s = \frac{R_1 - R_0}{R'_1 - R'_0} \frac{M_s}{1 + \chi_s} \qquad (5.9)$$

Relation qui montre que si χ_s augmente, M_s va diminuer. D'ailleurs puisque, dans le domaine des températures, supérieures à 300°C, B'_s (T) reste voisin de M_s (T) on peut conclure que :

$$\frac{R_1 - R_0}{R'_1 - R'_0} \simeq 1$$

c'est-à-dire, puisque R'_1 et R_1 sont toujours supérieurs à R'_0 et R_0, que nous pouvons admettre qu'au dessus de 250°C :

$$R'_1 \simeq R_1$$

Compte tenu des considérations précédentes, j'au pu tracer la courbe représentant R_1 en fonction de l'épaisseur, à la température ambiante, sur la figure 6.8. Sur la figure 6.9, j'ai représenté R_1 en fonction de la température pour diverses épaisseurs.

La valeur ainsi obtenue de R_1, à la température ambiante, pour une lame de 800 Å d'épaisseur est :

$$R_1 = - 68\ 10^{-11}\ m^3/C$$

Elle est tout à fait comparable à celles mesurées dans les échantillons massifs |32|.

Remarque Pour déterminer, à partir des résultats expérimentaux présentés ici, l'aimantation à saturation des films en dessous de 200°C, j'ai choisi, par tâtonnements, la valeur M_s (o) qui, compte tenu de la valeur mesurée de T_c, amène la courbe M_s (T) du massif en coïncidence avec la courbe B'_s (T) relative au film considéré lorsque la température est comprise entre 250°C et 300°C. A la température ambiante, les valeurs de M_s ainsi déterminées oscillent entre 0,54 T et 0,59 T selon les films. Il n'y a pas de diminution systématique de M_s avec l'épaisseur.

III.2 - *Les théories de l'effet Hall "aimantation"*

Jusqu'à présent, nous avons admis qu'il existait dans tout échantillon ferromagnétique, un effet Hall spontané, caractérisé par un coefficient R_1 de valeur très supérieure à celle du coefficient de Hall d'un métal non ferromagnétique.

L'origine de cet effet a fait l'objet de plusieurs travaux théoriques qui attribuent tous son existence à l'interaction spin-orbite. Il en résulte que la théorie désormais classique des phénomènes de transport, basée sur l'équation de Boltzman est insuffisante pour l'étude de l'effet Hall des ferromagnétiques. Il est nécessaire d'utiliser les méthodes de la statistique quantique et de résoudre l'équation d'évolution de l'opérateur densité |37|. Problème dont on n'a pas encore trouvé de solution générale à l'heure actuelle. Ceci explique l'existence de certaines divergences entre les diverses théories de l'effet Hall aimantation. Divergences qui proviennent des hypothèses différentes qui ont été faites pour simplifier le calcul et aboutir à une solution.

La théorie de Karplus et Luttinger |34| traite le cas de la diffusion des électrons de conduction par des impuretés réparties au hasard dans le cristal. Dans le cas d'impuretés très diluées, elle prévoit une constante de Hall proportionnelle à la résistivité ρ. Lorsque la concentration des impuretés augmente, un terme en ρ^2 s'ajoute au terme linéaire.

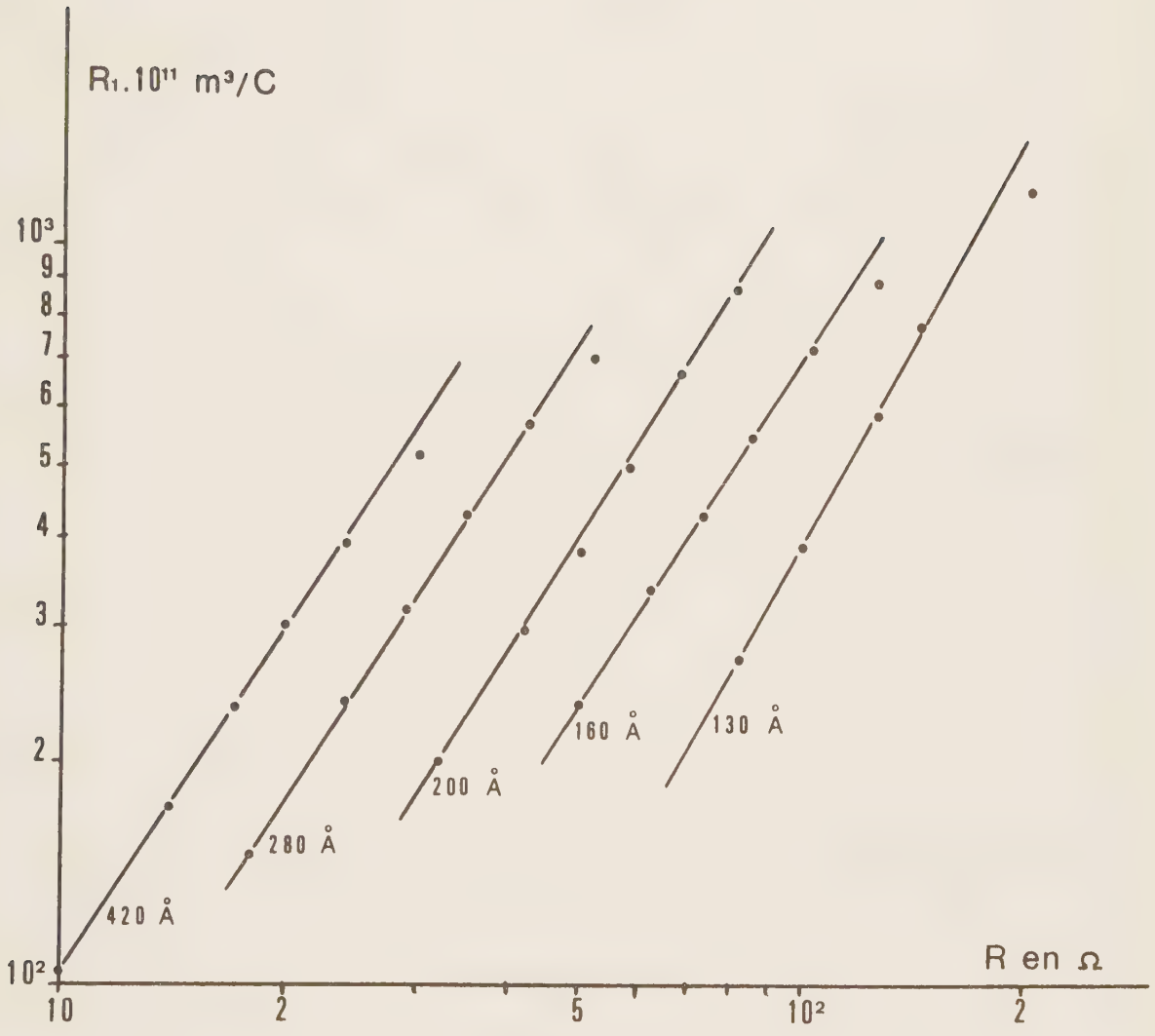

R₁.10¹¹ m³/C
10³
9
8
7
6
5
4
3
2
10²
420 Å
280 Å
200 Å
160 Å
130 Å
R en Ω
10
2
5
10²
2

FIGURE 6.10

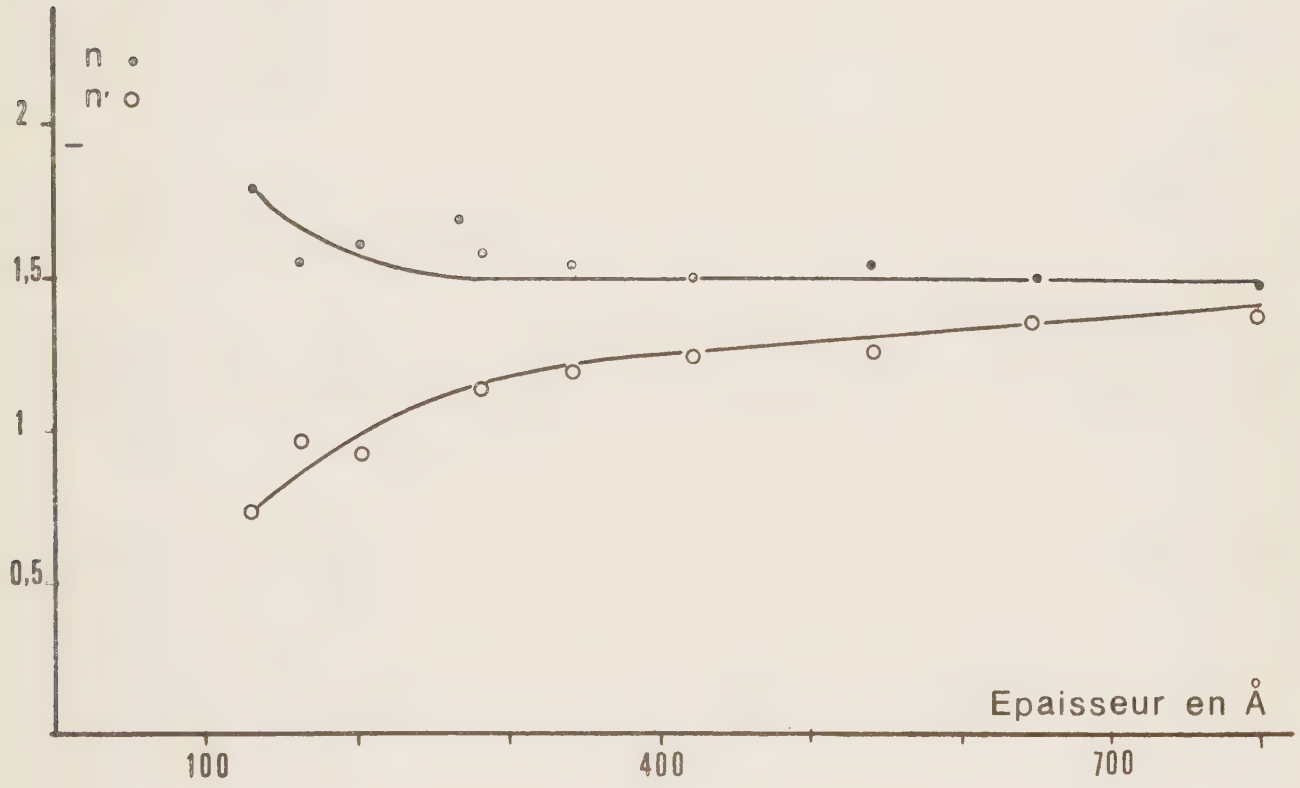


FIGURE 6.11

Smit |54| |55|, en traitant le même problème sur des bases un peu différentes de celles de Karplus et Luttinger aboutit à une relation entre R_1 et ρ de la forme :

$$R_1 = A\,\rho^n \qquad (6.37)$$

l'exposant n n'est pas nécessairement égal à 2.

Irkhin et Shavrov |31| ont fait un calcul, analogue à celui de Karplus et Luttinger, dans le cas où la diffusion des électrons est due aux phonons. Ils trouvent une conductivité de Hall indépendante de la température, ce qui conduit à une résistivité de Hall et, par suite, à une constante de Hall proportionnelle au carré de la résistivité.

Gurevitch et Yassievich |21|, traitant le cas où la diffusion est due à la fois aux phonons et aux impuretés, retrouvent à peu de chose près les résultats des auteurs précédents.

Kondo |38| a montré que l'interaction entre les électrons de conduction et le moment angulaire orbital des électrons d localisés pouvait contribuer à la valeur élevée du coefficient R_1 mais, ce processus n'est important que dans les terres rares et, peut être, dans le fer.

Sur la figure 6.10, j'ai reporté, en coordonnées bi-logarithmiques, pour plusieurs lames d'épaisseurs différentes, R_1 (T) en ordonnées et la résistance R (T) en abscisses. Les courbes Log (R_1) = f |log (R)| ainsi obtenues, sont des droites tant que la température reste inférieure à 300°C. Ceci signifie que, pour chaque lame, il existe entre le coefficient de Hall R_1 et la résistivité ρ (à épaisseur constante, ρ et R sont rigoureusement proportionnelles) une relation de la forme :

$$R_1 = A\,\rho^n$$

L'exposant n qui est égal à la pente des droites de la figure 6.10 est sensiblement constant et voisin de 1,5 tant que l'épaisseur est supérieure à 300 Å (figure 6.11). Pour les épaisseurs plus faibles, il augmente légèrement en restant inférieur à 2.

Les valeurs de n obtenues pour les films épais, sont du même ordre que celles du métal massif |54|.

Si l'on trace, de manière analogue, les courbes $\text{Log } R'_1 = f(\log R)$ on obtient encore des droites qui conduisent à la relation :

$$R'_1 = A' \rho^{n'}$$

mais l'exposant n' est inférieur à n et il diminue constamment avec l'épaisseur (figure 6.11). Résultat semblable à celui obtenu par Goureaux |20| sur des films déposés sous 10^{-6} Torr.

IV - *LE LIBRE PARCOURS MOYEN ET LA SURFACE DE FERMI DU NICKEL*

IV.1 - *Détermination du libre parcours moyen* |41|

De l'étude en fonction de l'épaisseur, présentée au chapitre II, de la résistivité ρ et de son coefficient de température α, on peut, en principe, déduire les valeurs de la résistivité, du coefficient de température et du libre parcours moyen des électrons du nickel massif ayant même structure que les films.

Sondheimer |56| a montré que lorsque le libre parcours moyen λ était supérieur à l'épaisseur a du film, la formule de Fuchs |17| reliant la résistivité ρ du film à son épaisseur et à la résistivité ρ_∞ du massif pouvait s'écrire sous la forme simplifiée :

$$\rho a = \rho_\infty \left(a + \frac{3}{8} \lambda\right) \qquad (6.38)$$

De même en écrivant le coefficient de température $\alpha = \frac{1}{\rho} \frac{d\rho}{dT}$ et en remarquant que dans le cas où la température T seule varie on a :

$$\frac{d\rho_\infty}{\rho_\infty} = - \frac{d\lambda}{\lambda}$$

on obtient la relation :

$$\alpha a = \alpha_\infty \left(a - \frac{3}{8} \lambda\right) \qquad (6.39)$$

dans laquelle α_∞ est le coefficient de température du métal massif. Sur la figure 6.12 on a tracé les courbes $\rho a = f(a)$ et $\alpha a = f(a)$ à partir des résultats expérimentaux présentés au chapitre II. On constate que ce sont des droites pour $a > 300$ Å.

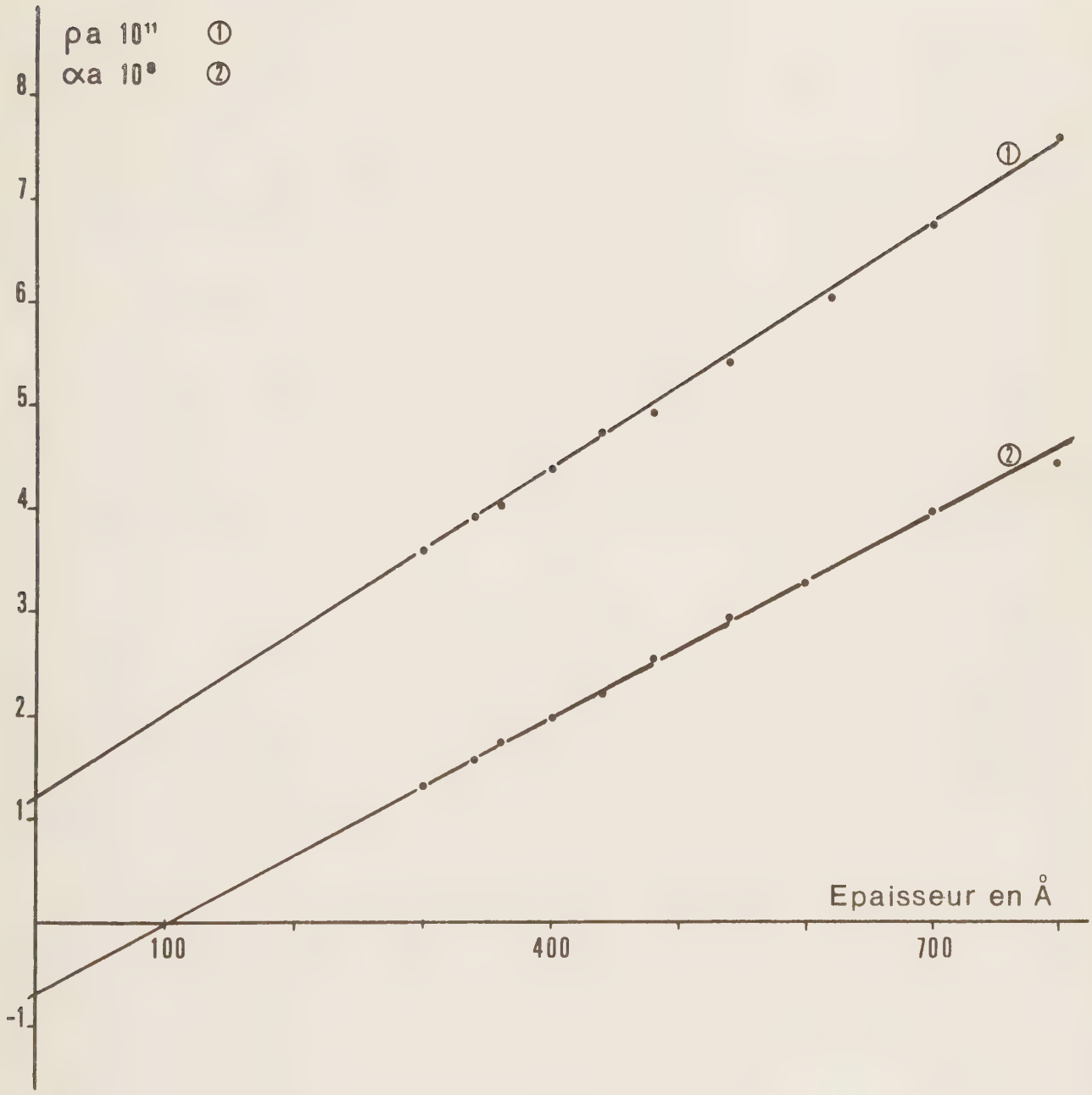


FIGURE 6.12

On en déduit :

$\rho_\infty = 7{,}5\ \mu\Omega.cm$

$\alpha_\infty = 6{,}5.10^{-3}\ \Omega/°C$

$\lambda = 570\ \mathring{A}$ à partir de la droite $\rho a = f(a)$

et $\lambda = 265\ \mathring{A}$ à partir de la droite $\alpha a = f(a)$

Les valeurs ainsi obtenues sont d'un ordre de grandeur convenable puisque l'on admet pour le nickel massif |65| :

$\rho_\infty = 6{,}84\ \mu\Omega\ .cm$

et $\alpha_\infty = 6{,}9.10^{-3}\ \Omega/°C$

En ce qui concerne les valeurs du libre parcours moyen, elles varient suivant les auteurs, entre 220 $\mathring{A}$ |13| |29| |60| et 550 $\mathring{A}$.

Le fait que nous obtenions deux valeurs différentes pour le libre parcours moyen peut s'interpréter si l'on admet la règle de Mathiessen selon laquelle la résistivité s'écrit :

$$\rho = \rho_r + \rho_i \qquad (6.40)$$

ρ_r désigne la résistivité résiduelle qui ne dépend que de la structure (défauts, impuretés...) de l'échantillon et ρ_i la résistivité idéale qui résulte des collisions électrons-phonons. Or, en traçant les droites de la figure 6.12, on suppose implicitement que toutes les lames ont même structure, ce qui est probablement faux. On obtiendra donc une meilleure valeur du libre parcours moyen en étudiant le produit $\alpha\rho = \frac{d\rho_i}{dT}$ qui, dans l'hypothèse de Mathiessen ne dépend pas de la structure.

En utilisant les ordonnées à l'origine des deux droites de la figure 6.12, on calcule le produit $\alpha_\infty.\rho_\infty.\lambda^2$ et en prenant pour α_∞ et ρ_∞ les valeurs indiquées ci-dessus, déduites des pentes de ces droites, on obtient $\lambda = 360\ \mathring{A}$.

IV.2 - *Discussion* |42|

En fait, la théorie de Fuchs-Sondheimer n'est valable que pour les métaux à une seule bande avec des surfaces d'énergie sphériques, c'est-à-dire pour les alcalins. Cependant, bien que la structure électronique du nickel soit compliquée par rapport à celle des alcalins, le résultat précédent possède une signification.

La structure électronique des métaux de transition et en particulier celle des ferromagnétiques a fait l'objet de nombreuses études. Les unes reposent sur un modèle à deux bandes initialement proposé par Mott |45|, les autres supposent que les électrons s forment une bande d'énergie alors que les électrons d sont localisés dans les cellules atomiques. Il semble généralement admis que le modèle à deux bandes s'applique particulièrement au nickel mais il n'est pas possible d'utiliser un modèle dans lequel la bande s est nettement séparée de la bande d. Il faut tenir compte d'une forte intéraction s - d.

Wakoh et Yamashita |59| ont proposé un modèle qui conduit à des résultats convenables pour la résistivité électrique du nickel massif |23|. Selon ce modèle, il faut considérer dans le nickel ferromagnétique deux surfaces de Fermi pour les lacunes mais celles-ci n'ont aucun effet appréciable sur la conductivité et trois surfaces de Fermi pour les électrons, appelés suivant la dénomination d'Ehrenreich |14| surface s, surface s - d et surface d - s. La dénomination de surface s signifie que le caractère s est prépondérant sur cette surface mais, du fait du recouvrement des bandes s et d, il existe un mélange des caractères s et d en chaque point de la surface de Fermi.

Le calcul des conductivités à 80°K |23| donne :

$$\sigma_s = 7{,}2\ 10^5\ \Omega^{-1}\ cm^{-1}$$
$$\sigma_{sd} = 0{,}3\ 10^5\ \Omega^{-1}\ cm^{-1}$$
$$\sigma_{ds} = 0{,}1\ 10^5\ \Omega^{-1}\ cm^{-1}$$

ce qui montre que le courant électrique est presque entièrement transporté par les électrons de la surface s. Or tous les électrons de cette surface ont, dant l'état ferromagnétique, même spin alors que tous ceux des surfaces s - d et d - s ont le spin opposé. Puisqu'il est peu probable que le spin d'un électron change lors de sa collision avec un phonon, les électrons de la surface s ne seront diffusés que vers un autre état de la même surface, si bien que l'on peut, en première approximation, considérer le nickel comme un métal à une seule bande de conduction. Sa surface de Fermi, la surface s ci-dessus, est analogue à celle du cuivre |59|, c'est-à-dire qu'elle rencontre les limites de la première zone de Brillouin mais qu'elle n'est cependant pas très différente d'une sphère. Par contre le libre parcours moyen des électrons est anisotrope |59|.

Dans ces conditions, en appliquant la théorie de Fuchs au nickel, nous avons remplacé la surface de Fermi réelle par une sphère que l'on peut considérer comme une position moyenne de la surface réelle et, puisque nous avons opéré sur des échantillons polycristallins, nous avons obtenu une valeur moyenne du libre par-

cours moyen des électrons s.

En effet, dans le cas d'un métal quelconque à une seule bande de conduction, la conductivité est un tenseur dont les éléments diagonaux sont donnés par la relation |62| :

$$\sigma_x = \frac{e^2}{\pi\, h^2} \iint_{SF} \frac{\tau\,(\vec{k})}{\left|\vec{\nabla}_k E\right|} \left(\frac{\partial E}{\partial k_x}\right)^2 ds \qquad (6.41)$$

et deux relations analogues pour σ_y et σ_z, dans lesquelles $\vec{k}$ désigne le vecteur d'onde, E l'énergie et $\tau\,(\vec{k})$ le temps de relaxation des électrons. L'intégrale est étendue à toute la surface de Fermi.

En introduisant dans ces relations le libre parcours moyen donné par l'expression :

$$\lambda\,(\vec{k}) = \tau\,(\vec{k})\; v\,(\vec{k}) = \frac{\tau\,(\vec{k}) \cdot \left|\vec{\nabla}_k E\right|}{h} \qquad (6.42)$$

où $v\,(\vec{k})$ désigne la vitesse des électrons de vecteur d'onde $\vec{k}$ et, en remarquant que sur un échantillon polycristallin on mesure une conductivité moyenne :

$$\sigma = \frac{\sigma_x + \sigma_y + \sigma_z}{3} \qquad (6.43)$$

On obtient l'expression :

$$\sigma = \frac{e^2}{12\pi^3 \hbar} \iint_{SF} \frac{\lambda\,(\vec{k})}{\left|\vec{\nabla}_k E\right|^2} \left[\left(\frac{\partial E}{\partial k_x}\right)^2 + \left(\frac{\partial E}{\partial k_y}\right)^2 + \left(\frac{\partial E}{\partial k_z}\right)^2\right] dS \qquad (6.44)$$

que l'on peut écrire avec Chambers |7|

$$\sigma = \frac{e^2\, A}{12\pi^3 \hbar} \langle\lambda\rangle \qquad (6.45)$$

A désigne l'aire de la surface de Fermi et $\langle\lambda\rangle$ une valeur moyenne du libre parcours moyen.

$$\langle\lambda\rangle = \frac{1}{A} \iint_{SF} \lambda\,(\vec{k})\, ds \qquad (6.46)$$

En fait, on obtient cette valeur moyenne seulement si la distribution des vitesses des électrons dans chaque cristal de l'échantillon est la même que dans un grand monocristal, c'est-à-dire si la taille des cristaux de l'échantillon est très supérieure à $\langle\lambda\rangle$. Cette condition n'est probablement pas réalisée dans

nos films de nickel dont les cristaux sont très petits, aussi devons nous considérer le résultat obtenu comme un ordre de grandeur seulement.

Si l'on introduit la résistivité du massif ρ_∞ ainsi que le nombre ν d'électrons de conduction par unité de volume, leur masse effective m^* et leur vitesse moyenne au niveau de Fermi v on obtient, à partir de la formule 6.45, la double relation :

$$\frac{1}{\rho_\infty \langle\lambda\rangle} = \frac{e^2 A}{12\pi^3 \hbar} = \frac{\nu e^2}{m^* v} \qquad (6.47)$$

Si l'on adopte pour ρ_∞ et $\langle\lambda\rangle$ les valeurs déduites de nos résultats expérimentaux, $\rho_\infty = 7{,}5\ \mu\Omega.cm$ et $\langle\lambda\rangle = 360$ Å, la première égalité nous donnera l'aire A de la surface de Fermi des électrons s du nickel d'après nos mesures. Si l'on adopte pour ν, m^* et v les valeurs d'Hasegawa [23], la seconde égalité nous donnera l'aire A_o de la sphère qui représente la position moyenne de la surface de Fermi théorique.

En effectuant le calcul avec $m^* = 4{,}2\ m_o$, m_o étant la masse de l'électron libre, $v = 0{,}517\ 10^8$ m/s et ν correspondant à 0,3 électrons libres par atomes [23] on trouve : $\frac{A}{A_o} = 1{,}025$, ce qui semble confirmer nos hypothèses.

IV.3 - *L'effet Hall ordinaire du nickel*

Si l'on s'en tient à la théorie élémentaire de l'effet Hall des métaux, on peut déduire de la mesure du coefficient de Hall R_o la densité ν des porteurs libres du métal considéré, en appliquant la relation bien connue :

$$R_o = \frac{1}{\nu e} \qquad (6.48)$$

où e est la charge de l'électron ($e = 1{,}6\ 10^{-19}$ C)

En fait, cette relation n'est applicable pratiquement qu'aux alcalins. Mais puisque nous venons de voir, qu'en première approximation, la conductivité électrique du nickel est due essentiellement aux électrons de la bande 4s, on peut penser que l'application de (6.48) à l'effet Hall ordinaire du nickel va permettre de déterminer un ordre de grandeur de la densité électronique dans cette bande.

Les résultats expérimentaux du chapitre V donnent pour valeur du coefficient de Hall R_o d'une lame de 800 Å, à la température ambiante :

$$R_o = - 5,8\ 10^{-11}\ m^3/C$$

Valeur du même ordre que celle trouvée dans les échantillons massifs |65|. Nous en déduisons qu'il y aurait 1,2 électrons libres par atomes dans la bande 4s : valeur évidemment erronée. Il nous faut donc conclure que les lacunes de la bande 3d contribuent à l'effet Hall ordinaire du nickel. Conclusion à laquelle sont également arrivés d'autres auteurs |15|.

Ce résultat n'est pas nécessairement en contradiction avec ceux du paragraphe précédent. Il est en effet, parfaitement concevable que les lacunes, qui, du fait de leur masse effective élevée et de leur faible libre parcours moyen, ne contribuent que pour une très faible part à la conductivité électrique, apportent une contribution non négligeable à l'effet Hall. D'autre part, la relation (6.48) n'est valable que lorsque les surfaces d'énergie sont sphériques et le temps de relaxation isotrope. Or, il semble que l'effet Hall soit beaucoup plus sensible à la forme exacte de la surface de Fermi que la conductivité. C'est ainsi que Cooper et Raimes |9| ont montré qu'une anisotropie du temps de relaxation sur une surface d'énergie sphérique entraine une augmentation de R_o. Ziman |63| |64|, pour sa part, a montré que dans le cas du cuivre, dont la surface de Fermi est de forme analogue à la surface s du nickel, le temps de relaxation est anisotrope et qu'il en résulte une augmentation ou une diminution de R_o suivant la nature des impuretés qui participent à la diffusion des électrons.

Conclusion

En préparant mes échantillons de telle sorte que, depuis le début de l'évaporation jusqu'à la fin de l'étude de leurs propriétés, ils restent constamment sous ultra-vide et en choisissant un procédé de dépôt qui supprime le creuset, j'ai éliminé les principales sources de contamination des films. Ceci m'a permis d'obtenir des résultats nouveaux, parfaitement reproductibles, et de proposer des interprétations, dans une certaine mesure plus précises puisqu'elles ne font pas intervenir certains phénomènes incontrôlables liés à la pollution du dépôt par des molécules du gaz résiduel.

Mais, pour ce faire, j'ai dû utiliser des vitesses de dépôt très faibles et déposer, sur la surface destinée à recevoir le film et avant le dépôt de celui-ci, des électrodes de mesure qui, d'une certaine façon, rendent inhomogène la conductibilité thermique superficielle du support. C'est probablement pour cette raison que l'effet Hall des films obtenus présente des "anomalies" dans les faibles champs. Ces "anomalies" m'ont permis de mettre en évidence les relations entre l'effet Hall et les propriétés magnétiques des films d'une part et entre les propriétés magnétiques et la structure du film d'autre part.

Le premier des résultats obtenus concerne la structure cristalline des films. Tous sont bien cristallisés, même lorsqu'ils ont été déposés à la température ambiante. Ce résultat apparait nettement sur les figures de diffraction électronique. Il explique l'influence relativement faible du recuit sur la résistivité électrique des films de plus de 200 Å d'épaisseur. Il se traduit également par le fait que la résistivité électrique et son coefficient de température ont, dans les films épais, des valeurs proches de celles des échantillons massifs.

Cependant, les films sont formés de microcristaux et ils présentent de nombreux défauts de structure, si bien que, même lorsqu'ils ont plusieurs centaines d'Angströms d'épaisseur, ils ne peuvent être considérés comme parfaitement continus ; ce que démontre l'existence du phénomène de trainage magnétique. Lorsqu'ils ont une épaisseur de l'ordre d'une centaine d'Angströms, leurs propriétés sont essentiellement déterminées par la valeur moyenne et la valeur quadratique moyenne du volume des grains qui les constituent. La notion d'épaisseur n'a plus alors beaucoup de signification.

En cherchant à interpréter l'action d'un champ électrique, appliqué parallèlement au support pendant le dépôt du film, sur les propriétés électriques de ce film, j'ai été amené à démontrer qu'il existe une force attractive, d'origine électrique, entre deux conducteurs, isolés et primitivement neutres, placés dans un champ électrique uniforme. L'ordre de grandeur de cette force est suffisant pour expliquer la diffusion sur la surface du support, des grains de petites dimensions qui apparaissent pendant les premiers stades de la formation des films. Ceci m'a conduit à supposer qu'une sorte de "mouvement Brownien" des petites particules intervenait dans le mécanisme de formation des films. Ce qui explique, notamment, l'évolution spontanée de la résistance électrique qui suit la fin du dépôt d'un film.

Cette hypothèse a été corroborée depuis par des travaux réalisés au Centre de Physique des Couches Minces de Marseille |1| |3| |4|.

En ce qui concerne l'effet Hall, j'ai pu constater qu'il est particulièrement sensible à la présence des défauts de structure comme le montre l'effet du recuit sur la valeur de la tension de Hall. D'autre part, le fait que la relation :

$$R'_1 \, B'_s = R''_1 \, B''_s$$

soit vérifiée expérimentalement, confirme la validité de l'analyse phénoménologique du chapitre IV qui, sans être entièrement originale, n'avait, à ma connaissance, pas encore été faite complètement. Cela confirme, en même temps, l'existence d'un coefficient de Hall "aimantation" indépendant de l'aimantation globale de l'échantillon puisque, c'est sur ce postulat que repose l'analyse du chapitre IV. Il faut en conclure que la mesure de la tension de Hall n'est pas un moyen de déterminer l'aimantation à saturation M_s d'un échantillon. Par ailleurs, c'est un moyen très sensibleble pour mettre en évidence l'existence de tensions internes ou de toute imperfection agissant sur les propriétés magnétiques des échantillons. Ainsi, il apparait que, dans le nickel, les tensions internes influencent fortement les mécanismes liés à l'aimantation ; résultat établi par Néel depuis longtemps.

Remarquons qu'un comportement "anormal" de l'effet Hall dans les faibles champs, analogue à celui que j'ai pu observer dans le nickel, a déjà été signalé dans le Cobalt |2|. Or le cobalt possède un coefficient de magnétostriction négatif, du même ordre de grandeur que celui du nickel. En outre, l'anisotropie magnétocristalline du cobalt est supérieure d'un ordre de grandeur à celle du nickel, si bien qu'elle peut également jouer un rôle dans la dispersion de l'axe de facile aimantation d'un échantillon polycristallin. Ceci semblerait donc confirmer mes hypothèses.

Il aurait été intéressant de "visualiser", sous ultra-vide, les domaines magnétiques dans les films que j'ai obtenus. Cela aurait permis de vérifier l'existence des "zones" et d'observer le déplacement lent des parois. De même, l'observation "in situ" de films déposés en présence d'un champ électrique, à l'intérieur d'un microscope électronique apporterait très vraisemblablement des enseignements sur le mécanisme d'action du champ. Mais dans un cas comme dans l'autre, la technique expérimentale pose des problèmes.

Bibliographie

REVUES BIBLIOGRAPHIQUES

On trouvera une bibliographie plus complète relative aux propriétés magnétiques des films minces ferromagnétiques dans :

COLOMBANI A. : Mémorial des Sciences Physiques, LVIII, 1954.
ANDRA W., FRAIT Z., KAMBERSKY V., MALEK Z., ROSLER U., SCHUPPEL W., SUDA P. VALENTA L., VOGLER G. : Phys. Stat. Solidi, 2, 99, 1962.
LE BAS J. : Les propriétés magnétiques des couches minces ferromagnétiques. Publ. de l'Université de Rouen, Dunod Distributeur, 1965 paru en 1967.
CHANG H., FETH G. C. : Trans. Communic. Electron, 83, 1965.
CHANG H., LIN Y. S. : IEEE Trans. Magnet., 3, 653, 1967.

OUVRAGES GENERAUX

HERPIN A. : Théorie du Magnétisme, P. U. F. - Paris, 1968.
SOOHOO R. F. : Magnetic thin films, Harper and Row, New-York, 1965.
PRUTTON M. : Thin ferromagnetic films - Butterworth - Londres, 1964.

INTRODUCTION

|1| BLOCH F. : Z. Physik, 261, 206, 1930.
|2| DÖRING W. : Z. Naturforsch, 16a, 1008, 1961.
|3| GLASS J. J., KLEIN M. J. : Phys. Rev., 109, 288, 1958.
|4| KRAMERS G. A., WANNIER G. H. : Phys. Rev., 60, 252, 1941.
|5| KLEIN M. J., SMITH R. S. : Phys. Rev., 81, 378, 1951.
|6| NEUGEBAUER C. A. : Structure and properties of thin films, p. 331, Wiley N. Y. 1959.
|7| ONSAGER L. : Phys. Rev., 65, 117, 1944.
|8| VALENTA L. : Izvest Akad. Nauk, SSSR, Ser fiz 21, 879, 1957.
|9| WEISS P. R. : Phys. Rev., 74, 1493, 1948.
|10| Cf, par exemple, les références 10 à 20 dans LE BAS J., déjà cité (voir revues bibliographiques).
|11| Cf, par exemple, les références 21 à 37 dans LE BAS J., déjà cité
|12| Cf références du chapitre III.

CHAPITRE I

|1| CASWELL H. L. : Phys. of thin films, 1, 1, 1967.
|2| CLEGG P. L., CROOK A. W. : J. Sci. Inst., 29, 201, 1952.
|3| COLOMBANI A. : Ann. Phys., 19, 272, 1944.
|4| TERNY M. : La mesure des températures, 1 vol., Dunod Edit. - Paris, 1962.
|5| TOLANSKY S. : Multiple Beam Interferometry of surface and films, Oxford at the Clarendon Press, 1959.

CHAPITRE II

|1| BELOUS M. V., WAYMAN C. M. : J. Appl. Phys., 38, 5119, 1967.
|2| BONFIGLIOLI G., MALVANO R. : Phys. Rev., 115, 1959.
|3| CASWELL H. L. : déjà cité au chapitre I.

|4| COLOMBANI A. : Ann. Phys., 19, 272, 1944.
Ann. Phys., 20, 335, 1945.
|5| COLOMBANI A., RANC G. : C. R. Acad. Sci., 232, 1344, 1951.
C. R. Acad. Sci., 233, 46, 1951.
C. R. Acad. Sci., 234, 78, 1952.
|6| COLOMBANI A., GOUREAUX G. : C. R. Acad. Sci., 248, 380, 1959.
|7| GOUREAUX G., COLOMBANI A. : C. R. Acad. Sci., 246, 740, 1958.
|8| HILL R. M. : Nature, 204, 35, 1964.
|9| HOLLAND L. : Vacuum deposition of thin films. Edit. Chapman and Hall - Londres, 1961.
|10| LAFOURCADE L., LARROQUE P. : Les techniques récentes en microscopie électronique, p. 271 (Colloque CNRS - Toulouse 1955).
|11| NIFONTOFF N. : C. R. Acad. Sci., 238, 1870, 1954.
|12| THUN R. E. : Phys. thin films, 1, 187, 1963.
|13| TRAPNELL B. M. W. ; Proc. Roy. Soc., A 218, 566, 1953.
|14| Metals Handbook, 8ème édit., vol. 1, édité par American Soc. for metals.

CHAPITRE III

|1| BELOUS M. V., WAYMAN C. H. : déjà cité au chapitre II.
|2| CHOPRA K. L. : J. Appl. Phys., 37, 2249, 1966.
|3| COLOMBANI A. : C. R. Acad. Sci., 215, 17, 1942.
Ann. Phys., 19, 272, 1944.
|4| COLOMBANI A., GOUREAUX G. : C. R. Acad. Sci., 250, 1264, 1960.
|5| DEFAY R., PRIGOGINE I. : Tension superficielle et adsorption, édit. Desoer Liège, 1951.
|6| DINGLE R. B. : Proc. Roy. Soc., A 201, 545, 1950.
|7| DURAND E. : Electrostatique et magnétostatique - Masson édit., p. 162 et suivantes, 1953.
|8| DURAND E. : Même référence, p. 167.
|9| FOSTER M. G. : Phys. Rev., 53, 250, 1938.
|10| GASSER R. P. H. : Ann. Rep. Progr. chem, 59, 7, 1963.
|11| GIBBS J. W. : Collected Works, Longmans Green et Cie - New-York, 1928.
|12| HARTMANN T. E. : J. Appl. Phys., 34, 1963.
|13| HERMAN D. S., RHODIN T. N. : J. Appl. Phys., 37, n° 4, 1966.
|14| HILL R. M. : Thin Solid films, 1, 241, 1967.
|15| HILL R. M. : Nature, 210, 512, 1966.

|16| KENNEDY D. I., HAYES R. E., ALSFORD R. W. : J. Appl. Phys., 38, 1986, 1967.
|17| KITTEL C. : Physique statistique - Traduction française, Dunod édit., p. 160, 1961.
|18| LE BAS J. : C. R. Acad. Sci., 267, 477, 1968.
|19| LE BAS J. : C. R. Acad. Sci., 268, 1393, 1969.
|20| NEUGEBAUER C. A., WEBB M. B. : J. Appl. Phys., 33, 1, 1962.
|21| NORDHEIM L. : Actes scientifiques et industriels, 131, 1934.
|22| PASHLEY D. W. : Adv. in Phys., 14, 327, 1965.
|23| PERROT, DAVID : C. R. Acad. Sci., 234, 1753, 1952.
|24| PRACHE P. M. : Cables Transm., 11, 32, 1957.
|25| RHODIN T. N. : The use of thin films in physical investigations, p. 187.
|26| SWANSON J. G., CAMPBELL D. S., ANDERSON J. C. : Thin Sol. films, 1, 325, L967.
|27| VOLMER M. : Kinetik der Phasenbildung - steinkopf, édit. Dresden une Leipzig, 1939.
|28| VAN ITTERBECK, DEGREVE : Portug. Phys., 2, 125, 1946.
|29| WULFF G. : Z. Kristallog., 34, 449, 1901.

CHAPITRES IV et V

|1| BIRSS R. R. : Symmetry and Magnetism, 1 vol. de la collection Selected Topics in Solid State Physics, E. P. WOLFARTH édit., North Holland Publ. Amsterdam.
|2| BLATT F. J. : Phys. Rev., 95, p. 13, 1954.
|3| BUSCH G., HULLIGER F., JAGGI R. : Helv. Phys. Act., 31, 3, 1958.
|4| COLOMBANI A., HUET P., C. R. Acad. Sci., 244, 1344, 1957.
|5| FONER S., PUGH E. M. : Phys. Rev., 91, 20, 1953.
|6| FRANK V. : Appl. Sci. Research, B 3, 129, 1954.
|7| HERPIN A. : Déjà cité, voir ouvrages généraux, p. 803 à 808.
|8| HERPIN A. : Déjà cité, p. 831 à 841.
|9| HERPIN A. : Déjà cité, p. 291.
|10| ISENBERG I., RUSSEL B. R., GREENE G. F. : Rev. Sci. Inst., 19; 685, 1948.
|11| JAGGI R., HULLIGER F. : dans Landolt-Börnstein Zahlenwerte une Funktionen (Springer-Verlag - Berlin), 1959.
12| JAN J. P. : dans Solid State Physics, vol. 5, p. 3, 1957, SEITZ F. et TURNBULL D., édit. (Acad. Press N. Y.).

|13| KITTEL C. : Phys. Rev., 70, 965, 1946.
|14| KURHT F. : Siemens Zeits, 28, 843, 1954.
|15| PERRIER A. L. : Helv. Phys. Act., 6, 462, 1933.
|16| PUGH E. M. : Phys. Rev., 36, 1503, 1930.
|17| SCHOCKLEY W. : Phys. Rev., 73, 1246, 1948;
|18| SMITH A. W., SEARS R. W. : Phys. Rev., 34, 1466, 1[illegible]
|19| VOLGER J. : Phys. Rev., 79, 1023, 1950.
|20| WAKOH S., YAMASHITA J., J. Phys. Soc. Jap., 19, 1432, 1964.
|21| WICK R. F. : J. Appl. Phys., 25, 741, 1954.

CHAPITRE VI

|1| ABBEL R. : Z. Angew Phys., 20, 212, 1966.
|2| ABBEL R. : Z. Angew Phys., 22, 296, 1968.
|3| ABELEDO C. R., SELWOOD P. W. : J. Appl. Phys., 32, 229, 1961.
|4| BELOUS M. V., WAYMAN C. H. : Déjà cité, chapitre I.
|5| BUBE R. H. : Appl. Phys. Letters, 13, 136n 1968.
|6| BLADES J. D., DREW J. B. : Thin films, 1, 135, 1968.
|7| CHAMBERS R. G. : Proc. Roy. Soc., 215, 481, 1952.
|8| COLOMBANI A., GOUREAUX G. : C. R. Acad. Sci., 250, 4310, 1960.
|9| COOPER J., RAIMES S. : Phil. Mag., 4, 145, 1959.
|10| CORCIOVEI A. : Czech J. Phys., 10, 917, 1960.
|11| CORCIOVEI A. : Act. Phys. Pol., 1, 91, 1963.
|12| CRAIK D. J., TEBBLE R. S. : Ferromagnetism and Ferromagnetic domains, North Holland Pub. cy - Amsterdam, 1965.
|13| CRITTENDEN E. C., HOFFMAN R. W. : J. Phys. Rad., 17, 220, 1956.
|14| EHRENREICH H., PHILIPP H. R., OLECHNA D. J. : Phys. Rev., 131, 2469, 1963.
|15| EHRLICH A. C., DREESEN J. A., PUGH E. M. : Phys. Rev., 133, 407, 1963.
|16| ELMORE W. C. : Phys. Rev., 54, 1092, 1938.
|17| FUCHS K. : Proc. Phil. Soc., 43, 100, 1936.
|18| FUJIWARA H., SUGITA Y., SAITO N. : J. Phys. Soc. Jap., 20, 2088, 1965.
|19| GONDO Y., KONNO H., FUNATOGAWA Z. : J. Phys. Soc. Jap., 16, 2345, 1961.
|20| GOUREAUX G. : Thèse, Caen, 1960.
|21| GUREVITCH L. E., YASSIEVICH I. N. : Sov. Phys. Solid State, 4, 2091, 1963.
|22| HAHN A. : Ann. Phys. (Leipzig), 11, 277, 1963.
|23| HASEGAWA A., WAKOH S., YAMASHITA J. : J. Phys. Soc. Jap., 20, 1865, 1965.

|24| HELLENTHAL W. : Z. Phys., 170, 303, 1962.

|25| HELLENTHAL W. : IEEE Trans Magnet, 4, 11, 1968.

|26| HELLENTHAL W. : Z. Phys., 194, 323, 1966.

|27| HERPIN A. : Déjà cité, p. 767.

|28| HERPIN A. : Déjà cité, p. 372.

|29| HIRSHORN J. S. : J. Phys. Chem. Solids, 23, 182, 1962.

|30| HOFFMAN R. W. : dans "The use of thin films in physical investigations" p. 261, J C Anderson édit., Academic press - Londres, 1966.

|31| IRKHIN V. P., SHAVROV V. G. : Sov. Phys. JETP, 15, 854, 1962.

|32| JAGGI R., HULLIGER F. : dans Landolt-Börnstein Zahlenwerte une Funktionen - Springer Verlag - Berlin, 1959.

|33| KACZER J., ZELENY M., SUDA P. : Czech J. Phys., B 13, 579, 1963.

|34| KARPLUS R., LUTTINGER J. M. : Phys. Rev., 108, 590, 1957.

|35| KITTEL C. : Déjà cité, chapitre V.

|36| KITTEL C. : Phys. Rev., 110, 1295, 1958.

|37| KOHN W., LUTTINGER J. M. : Phys. Rev., 108, 590, 1957.

|38| KONDO J. : Progr. Theor. Phys., 27, 772, 1962.

|39| LANGEVIN P. : Ann. Chim. Phys., 5, 70, 1905.

|40| LE BAS J. : Propriétés magnétiques des couches minces ferromagnétiques Chapitre III, déjà cité, 1965.

|41| LE BAS J. : C. R. Acad. Sci., 268, 262, 1969.

|42| LE BAS J. : C. R. Acad. Sci., 268, 339, 1969.

|43| MAC DONALD J. R. : Phys. Rev., 106, 890, 1957.

|44| MALEK Z., KAMBERSKY V. : Czech J. Phys., 8, 416, 1958.

|45| MOTT N. F. : Proc. Roy. Soc., 153, 699, 1936.

|46| NEEL L. : C. R. Acad. Sci., Paris, 224, 1488, 1947.

|47| NEEL L. : Ann. Geophys., 5, 99, 1949.

|48| NEEL L. : J. Phys. Rad., 15, 225, 1954.

|49| NEEL L. : Ann. de l'Université de Grenoble, 22, 299, 1946.

|50| NEEL L. : J. Phys. Rad., 17, 250, 1956.

|51| NEUGEBAUER C. A. : Dans Single crystal films, p. 361, Pergamon Press, 1964.

|52| POOLE C. P. : J. Phys. Chem. Sol., 24, 781, 1963.

|53| SAITO N., FUJIWARA H., SUGITA Y. : J. Phys. Soc. Jap., 19, 1116, 1964.

|54| SMIT J. : Physica, 21, 877, 1955.

|55| SMIT J. : Physica, 24, 39, 1958.

|56| SONDHEIMER E. H. : Adv. in Phys., 1, 1, 1952.

|57| STONER E. C., WOHLFARTH E. P. : Phil. trans. Roy. Soc., A 240, 599, 1948.

|58| VOLGER J.,: Phys. Rev. 79, 1023, 1950.

|59| WAKOH S., YAMASHITA J. : Déjà cité, chapitre V.

|60| WEDLER G., FOUAD M. : Z. Phys. chem., 40, 11, 1964.

|61| WEIL L. : Colloque national de Strasbourg, CNRS, 1957.
|62| WILSON A. H. : The Theory of Metals, Cambridge Univ. Press, 1936.
|63| ZIMAN J. M. : Adv. in Phys., 10, 1, 1961.
|64| ZIMAN J. M. : Phys. Rev., 121, 1320, 1961.
|65| Metals reference Book, 8ème ed., édit. par American Soc. Metals.

CONCLUSION

|1| CARLAN A., FAURE R., DESROUSSEAUX G. : Congrès de Physique des Couches Minces p. 263, Cannes, 1970.
|2| COLOMBANI A., DARIDON R. : Congrès de Louvain, p. 263, 1961.
|3| DESROUSSEAUX G. : C. R. Acad. Sci., 270, 1062, 1970.
|4| METOIS J. J., MASSON A., KERN R. : Congrès de Physique des Couches Minces p. 191, Cannes, 1970.

Annexe A

MATERIALS RESEARCH CORPORATION
Orangeburg, New York 10962 · 914 ELmwood 9-4200

MATERIALS CERTIFICATION

1. Material: Marz Grade Nickel
2. Form: Foil
3. Condition: Cold Worked
4. Processing Description: Materials of the highest purity and quality are electron beam zone refined in vacuums of 10^{-6} torr and cold worked to size in clean room conditions by rolling.
5. Typical Analysis of Marz Grade Material.

Impurity	Content (ppm)	Impurity	Content (ppm)
C	17	Mo	0.5
H	0.2	Na	0.04
O	18	Nb	< 0.02
N	3	Ni	---
Ag	< 0.02	Pb	< 0.02
Al	0.3	Pd	< 0.03
Bi	< 0.01	Pt	< 0.03
Ca	0.1	Rh	< 0.01
Cd	< 0.08	S	< 0.12
Co	< 0.1	Si	0.2
Cr	1.5	Sn	< 4.0
Cu	< 0.04	Ta	< 0.5
Fe	12	Ti	0.15
Hf	< 0.03	V	< 0.01
K	0.2	W	1.5
Mg	0.02	Zn	< 0.4
Mn	0.03	Zr	< 0.15

6. Remarks: _____

MATERIALS RESEARCH CORPORATION

Date _____ By _____

Attention Receiving: Forward this information with material to cognizant engineer.

Annexe B

SOLUTION RIGOUREUSE DU PROBLEME DE DEUX SPHERES CONDUCTRICES DANS UN CHAMP UNIFORME

I - CALCUL DU POTENTIEL $V(\xi, \eta)$

Avec les notations du paragraphe 5.2 du chapitre III, le système est de révolution autour de l'axe oz et nous pouvons écrire :

$$V(\xi, \eta) = \phi(\xi, \eta) + \phi'(\xi, \eta) \qquad \text{B.1}$$

où :

$$\phi'(\xi, \eta) = -E.z = -\frac{E_0 a \operatorname{sh} \xi}{\operatorname{ch} \xi - \cos \eta} \qquad \text{B.2}$$

est le potentiel dont dérive le champ influençant.

$\phi(\xi, \eta)$ est le potentiel dû aux charges portées par les sphères. Il satisfait en tout point extérieur aux sphères, à l'équation de Laplace :

$$\Delta\phi = 0 \qquad \text{B.3}$$

et sur les sphères aux conditions :

$$\phi_1 + \phi'_1 = V_1 = \text{cte}$$
$$\phi_2 + \phi'_2 = V_2 = \text{cte} \qquad \text{B.4}$$

Dans le système de coordonnées défini par 3.28, l'équation B.3 s'écrit :

$$\frac{(\mathrm{ch}\ \xi - \cos\ \eta)^3}{a^2}\left[\frac{\partial}{\partial \xi}\left(\frac{1}{\mathrm{ch}\ \xi - \cos\ \eta}\ \frac{\partial \phi}{\partial \xi}\right) + \frac{1}{\sin\ \eta}\ \frac{\partial}{\partial \eta}\left(\frac{\sin\ \eta}{\mathrm{ch}\ \xi - \cos\ \eta}\ \frac{\partial \phi}{\partial \eta}\right) + \frac{1}{\sin^2 \eta\ (\mathrm{ch}\ \xi - \cos\ \eta)}\ \frac{\partial^2 \phi}{\partial \alpha^2}\right] = 0 \qquad \text{B.5}$$

en posant :

$$\phi = \sqrt{2}\ (\mathrm{ch}\ \xi - \cos\ \eta)^{1/2}\ \psi \qquad \text{B.6}$$

On ramène B.5 à une équation connue dont les variables se séparent et dont la solution s'écrit :

$$\psi\ (\xi,\ \eta) = \sum_{\ell=0}^{\infty}\left[A_\ell\ \mathrm{ch}\ (\ell + \tfrac{1}{2})\ \xi + B_\ell\ \mathrm{sh}\ (\ell + \tfrac{1}{2})\ \xi\right] P_\ell\ (\cos\ \eta) \qquad \text{B.7}$$

ℓ est un entier variant de 0 à l'infini. $P_\ell\ (\cos\ \eta)$ désigne le polynôme de Legendre de degré ℓ. A_ℓ et B_ℓ sont des constantes qui peuvent dépendre du paramètre ℓ.

En posant par analogie avec B.6 :

$$\psi'\ (\xi,\ \eta) = \frac{\phi'\ (\xi,\ \eta)}{\sqrt{2}\ (\mathrm{ch}\ \xi - \cos\ \eta)^{1/2}} = -\frac{E_0\ a\ \mathrm{sh}\ \xi}{\sqrt{2}\ (\mathrm{ch}\ \xi - \cos\ \eta)^{3/2}} \qquad \text{B.8}$$

et en développant cette expression en série de polynômes de Legendre, on obtient l'expression du potentiel $V\ (\xi,\ \eta)$ en tout point de l'espace sous la forme :

$$\frac{V\ (\xi,\ \eta)}{\sqrt{2}\ (\mathrm{ch}\ \xi - \cos\ \eta)^{1/2}} =$$

$$\sum_{\ell=0}^{\infty}\left[A_\ell\ \mathrm{ch}\ (\ell + \tfrac{1}{2})\ \xi + B_\ell\ \mathrm{sh}\ (\ell + \tfrac{1}{2})\ \xi - 2E_0\ a\ \frac{\xi}{|\xi|}\ (\ell + \tfrac{1}{2})\ e^{-(\ell + \frac{1}{2})\ |\xi|}\right] P_\ell\ (\cos\ \eta) \qquad \text{B.9}$$

Sur les sphères S_1 et S_2 le potentiel $V(\xi, \eta)$ est constant et dans ce cas, on peut développer le premier membre de B.9 en série de polynômes de Legendre. En identifiant terme à terme les deux séries obtenues dans B.9, on détermine les coefficients A_ℓ et B_ℓ qui satisfont les conditions aux limites B.4.

Pour simplifier l'écriture, nous désignerons par $R_\ell(\xi)$ le terme entre crochets dans (B.9). Compte tenu des conditions B.4, $R_\ell(\xi)$ s'écrit :

$$R_\ell(\xi) = \frac{\left[V_1 - 2E_0\, a\, (\ell + \frac{1}{2})\right] e^{(\ell + \frac{1}{2})\xi_1} \operatorname{sh}(\ell + \frac{1}{2})(\xi_2 - \xi)}{\operatorname{sh}(\ell + \frac{1}{2})(\xi_2 - \xi_1)}$$

$$+ \frac{\left[V_2 + 2E_0\, a\, (\ell + \frac{1}{2})\right] e^{-(\ell + \frac{1}{2})\xi_2} \operatorname{sh}(\ell + \frac{1}{2})(\xi - \xi_1)}{\operatorname{sh}(\ell + \frac{1}{2})(\xi_2 - \xi_1)} \qquad \text{B.10}$$

$$- 2\,\frac{\xi}{|\xi|}\, E_0\, a\, (\ell + \tfrac{1}{2})\, e^{-(\ell + \frac{1}{2})|\xi|}$$

II - *CALCUL DE LA DENSITE SUPERFICIELLE DE CHARGES SUR CHAQUE SPHERE*

La densité superficielle de charges σ est donnée par la loi de Coulomb :

$$\sigma = + \varepsilon_0 E = - \varepsilon_0 (\operatorname{grad} V)_S \qquad \text{B.11}$$

S_1 et S_2 sont des surfaces équipotentielles, donc $\overrightarrow{\operatorname{grad} V}$ est normal à la sphère et par suite avec les notations classiques :

$$\operatorname{grad} V = \frac{1}{h_\xi}\,\frac{\partial V}{\partial \xi} \qquad \text{B.12}$$

avec :

$$h_\xi = \frac{a}{\operatorname{ch} \xi - \cos \eta} \qquad \text{B.13}$$

d'où, en posant :

$$S_\ell(\xi) = \frac{\partial R_\ell(\xi)}{\partial \xi} \qquad \text{B.14}$$

$$\sigma_1 = \frac{\varepsilon_0 V_1}{2a_1} - \frac{\varepsilon_0 \sqrt{2}}{a} (\mathrm{ch}\,\xi_1 - \cos\eta)^{3/2} \sum_\ell S_\ell(\xi_1) P_\ell(\cos\eta) \qquad \text{B.15}$$

$$\sigma_2 = \frac{\varepsilon_0 V_2}{2a_2} + \frac{\varepsilon_0 \sqrt{2}}{a} (\mathrm{ch}\,\xi_2 - \cos\eta)^{3/2} \sum_\ell S_\ell(\xi_2) P_\ell(\cos\eta) \qquad \text{B.16}$$

III - CALCUL DE LA CHARGE TOTALE PORTEE PAR CHAQUE SPHERE

Avec les notations conventionnelles, l'élément d'aire dS d'une surface ξ = cte s'écrit :

$$dS = h_\eta\, h_\alpha\, d\eta\, d\alpha \qquad \text{B.17}$$

or

$$h_\eta = h_\xi = \frac{a}{\mathrm{ch}\,\xi - \cos\eta}$$

$$h_\alpha = \frac{a \sin\eta}{\mathrm{ch}\,\xi - \cos\eta} \qquad \text{B.18}$$

d'où

$$dS = \frac{a^2 \sin\eta}{\mathrm{ch}\,\xi - \cos\eta}\, d\eta\, d\alpha \qquad \text{B.19}$$

En multipliant σ_1 et σ_2 par cette expression et en intégrant, on obtient :

$$Q_1 = 2\pi\,\varepsilon_0\, a_1\, V_1 - 4\pi\,\varepsilon_0\, a \sum_\ell e^{(\ell+\frac{1}{2})\xi_1} \frac{S_\ell(\xi_1)}{\ell+\frac{1}{2}} \qquad \text{B.20}$$

$$Q_2 = 2\pi\,\varepsilon_0\, a_2\, V_2 + 4\pi\,\varepsilon_0\, a \sum_\ell e^{-(\ell+\frac{1}{2})\xi_2} \frac{S_\ell(\xi_2)}{\ell+\frac{1}{2}} \qquad \text{B.21}$$

IV - ENERGIE ELECTRIQUE DU SYSTEME

Elle est donnée par la relation 3.27. V_1 et V_2 étant des données du problème, Q_1 et Q_2 étant fournis par les relations précédentes, il reste à calculer l'expression :

$$W' = \frac{1}{2} \iint_{S_1} \phi' \, \sigma_1 \, dS_1 + \frac{1}{2} \iint_{S_2} \phi' \, \sigma_2 \, dS_2 \qquad \text{B.22}$$

On obtient :

$$W' = \pi \, \varepsilon_0 \, E_0 \, (V_1 \, a_1^2 \, \mathrm{ch} \, \xi_1 - V_2 \, a_2^2 \, \mathrm{ch} \, \xi_2)$$
$$- 4\pi \, \varepsilon_0 \, E_0 \, a^2 \sum_{\ell=0}^{\infty} \left(e^{(\ell + \frac{1}{2})\xi_1} \, S_\ell \, (\xi_1) + e^{-(\ell + \frac{1}{2})\xi_2} \, S_\ell \, (\xi_2) \right) \qquad \text{B.23}$$

Soit, en explicitant $S_\ell \, (\xi_1)$ et $S_\ell \, (\xi_2)$

$$W' = V_1 \, E_0 \left[\pi \, \varepsilon_0 \, a_1^2 \, \mathrm{ch} \, \xi_1 + 4\pi \, \varepsilon_0 \, a^2 \sum_{\ell=0}^{\infty} (\ell + \tfrac{1}{2}) \, (\alpha_\ell + \beta_{\ell_1}) \right]$$
$$- V_2 \, E_0 \left[\pi \, \varepsilon_0 \, a_2^2 \, \mathrm{ch} \, \xi_2 + 4\pi \, \varepsilon_0 \, a^2 \sum_{\ell=0}^{\infty} (\ell + \tfrac{1}{2}) \, (\alpha_\ell + \beta_{\ell_2}) \right] \qquad \text{B.24}$$
$$- 8\pi \, \varepsilon_0 \, E_0^2 \, a^2 \sum_{\ell=0}^{\infty} (\ell + \tfrac{1}{2})^2 \, (2\alpha_\ell + \beta_{\ell_1} + \beta_{\ell_2})$$
$$- \pi \, \varepsilon_0 \, E_0^2 \left[a_1^3 \, (1 + \mathrm{ch}^2 \, \xi_1) + a_2^3 \, (1 + \mathrm{ch}^2 \, \xi^2) \right]$$

avec :

$$\alpha_\ell = \frac{e^{(\ell + \frac{1}{2}) \, (\xi_2 - \xi_1)}}{\mathrm{sh} \, (\ell + \frac{1}{2}) \, (\xi_2 - \xi_1)}$$

$$\beta_{\ell_1} = e^{(2\ell + 1)\xi_1} \coth (\ell + \tfrac{1}{2}) \, (\xi_2 - \xi_1) \qquad \text{B.25}$$

$$\beta_{\ell_2} = e^{-(2\ell + 1)\xi_2} \coth (\ell + \tfrac{1}{2}) \, (\xi_2 - \xi_1)$$

V - CALCUL DE LA FORCE QUI S'EXERCE ENTRE DEUX SPHERES

L'expression de cette force est obtenue dérivant l'expression de l'énergie W par rapport à la distance b des centres des deux sphères :

$$f = - \frac{\partial W}{\partial b}$$

Dans le cas de deux sphères isolées et initialement neutres ($Q_1 = Q_2 = 0$) les relations B.20 et B.21 forment un système de deux équations qui permet de calculer V_1 et V_2 en fonction du champ appliqué E_0 et des paramètres a, ξ_1, ξ_2. En écrivant ensuite les deux conditions :

$$\frac{dQ_1}{db} = \frac{dQ_2}{db} = 0$$

on obtient à partir de B.20 et B.21 un nouveau système d'équations qui permet de déterminer $\frac{dV_1}{db}$ et $\frac{dV_2}{db}$ en fonction des mêmes paramètres.

En reportant les expressions ainsi obtenues dans celle obtenue en dérivant B.24, on peut écrire une expression de la force f trop compliquée pour être utilisable telle quelle.

J'ai donc procédé à une évaluation numérique de la force f dans un cas particulier en donnant aux rayons des sphères et à la distance de leurs centres, les valeurs numériques indiquées au paragraphe V.2 du chapitre III.

L'expression de la force f fait intervenir des sommes de séries dont les termes sont, soit des exponentielles négatives, soit des produits d'exponentielles négatives par des fonctions hyperboliques. Lorsqu'il s'agit de sommes d'exponentielles, leur calcul numérique peut être effectué exactement puisque ce sont en fait des séries géométriques de raison inférieure à l'unité. Lorsque les termes de la série contiennent des fonctions hyperboliques, il suffit de calculer exactement les quatre premiers termes, les termes suivants pouvant être remplacés par des expressions purement exponentielles, étant donné que, pour $x \geqslant 5$, on peut écrire :

$$\mathrm{sh}\ x \simeq \mathrm{ch}\ x \simeq \frac{e^x}{2}$$

Les calculs ont été effectués à l'aide d'une machine Hewlett-Packard, modèle 9 100 A.

Les résultats obtenus sont donnés au chapitre III.